ORSAY
N° d'ordre : 2695

THESE

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE DE PARIS - SUD
CENTRE D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

Brigitte BEUNEU

INFLUENCE D'UNE CONTRAINTE UNIAXIALE SUR DES DEFAUTS PONCTUELS

Soutenue le 22 mars 1983, devant la Commission d'Examen

MM.	J.	PHILIBERT	Président
	J.	GRILHE	
	F.	MAURY	
	C.	MINIER	Examinateurs
	Y.	QUERE	
	J.	VON STEBUT	

UNIV.
LEIDEN
1951

ORSAY
N° d'ordre : 2695

THESE

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE DE PARIS - SUD
CENTRE D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

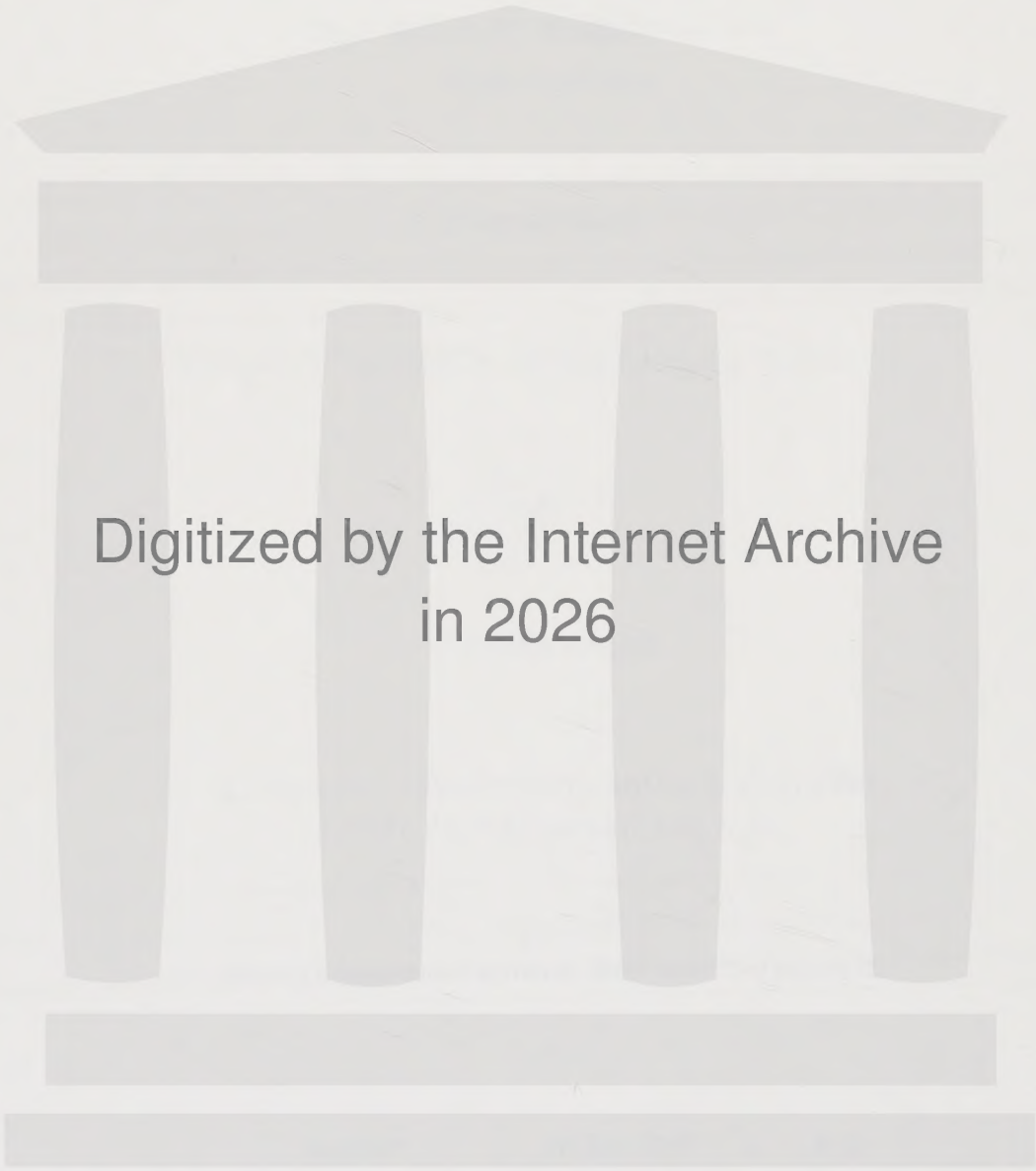
par

Brigitte BEUNEU

INFLUENCE D'UNE CONTRAINTE UNIAXIALE SUR DES DEFAUTS PONCTUELS

Soutenue le 22 mars 1983, devant la Commission d'Examen

MM.	J.	PHILIBERT	Président
	J.	GRILHE	
	F.	MAURY	
	C.	MINIER	Examinateurs
	Y.	QUERE	
	J.	VON STEBUT	


Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41543524_0011

REMERCIEMENTS

Le présent travail a été effectué à la Section d'Etude des Solides Irradiés, au Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses

Je suis très reconnaissante à Monsieur Y. QUERE qui m'y a accueillie et qui m'a apporté son aide et ses conseils, en particulier pour la 2ème partie de ce travail.

M. le professeur J. PHILIBERT a accepté de présider cette thèse et d'en être le rapporteur. Je l'en remercie vivement.

Je remercie aussi Mme MINIER et M. GRILHE qui ont accepté de faire partie du jury.

Monsieur J. VON STEBUT m'a initiée à la recherche expérimentale. Malgré son départ de la section il a continué à contribuer à la 1ère partie de ce travail par de fructueuses discussions ; je l'en remercie ici sincèrement.

Une collaboration avec l'équipe du Professeur LUCASSON à Orsay a permis de réaliser les calculs d'énergies de configuration au CIRCE. C'est avec plaisir que je remercie ici le Professeur LUCASSON qui m'a accueillie et m'a permis d'effectuer de nombreux calculs, et Françoise MAURY qui m'a introduite dans ses programmes et dans les dédales du CIRCE, et qui m'a beaucoup aidée de ses conseils dans la poursuite et le dépouillement de ces calculs.

./...

Toutes les irradiations ont eu lieu à Fontenay-aux-Roses dans l'accélérateur VAN de GRAFF ; en particulier les mesures délicates d'élastorésistivité n'auraient pu avoir lieu sans l'aide de J. DURAL qui a plié le dispositif aux exigences de l'expérience avec une imagination et une patience sans bornes et sans horaires; je l'en remercie très vivement.

Enfin, l'ambiance chaleureuse et détendue de la Section a certainement beaucoup facilité ce travail comme bien d'autres.

Merci à tous !

TABLE DES MATIERES

(Le plan détaillé figure en tête de chaque chapitre)

INTRODUCTION 1

CHAPITRE I - ELASTORÉSISTIVITÉ - GÉNÉRALITÉS 3

I.1 - Définitions 4

I.2 - Méthode de mesure 7

I.3 - Exemples d'utilisation et d'origine de l'élastorésistivité 11

CHAPITRE II - ELASTORÉSISTIVITÉ DES DÉFAUTS D'IRRADIATION 17

II.1 - Généralités sur la méthode de mesure 18

II.2 - Les expériences de Von Stebut aux neutrons rapides 19

II.3 - Irradiations aux électrons : les défauts créés 22

II.4 - Irradiations aux électrons : l'élastorésistivité 26

II.5 - Discussion 33

CHAPITRE III - IRRADIATIONS ET RECUITS DU MOLYBDÈNE 42

III.1 - Bibliographie 43

III.2 - Conditions expérimentales 50

III.3 - Production des défauts 55

III.4 - Recuit des défauts 60

CHAPITRE IV - RELAXATIONS 73

IV.1 - Bibliographie 74
IV.2 - Principe de nos expériences 78
IV.3 - Résultats 81
IV.4 - Discussion 88
IV.5 - Conclusions 94

CHAPITRE V - MODÈLE DE DESCRIPTION DES RELAXATIONS 95

V.1 - Energies de configurations des défauts 96
V.2 - Modèle cinétique 98
V.3 - Conclusion 106

CHAPITRE VI - CALCUL DE TYPE "LATTICE STATICS" D'ÉNERGIE DE CONFIGURATION . 107

VI.1 - Principe 108
VI.2 - Résultats 115
VI.3 - Conclusion 122

ANNEXES 124

BIBLIOGRAPHIE 170

INTRODUCTION

Le fil conducteur des travaux décrits dans ce mémoire est l'influence d'une contrainte uniaxiale (donc anisotrope) sur les défauts ponctuels, par mesure de leur résistivité. Le texte est formé de deux parties distinctes :

- les Chapitres I et II qui concernent l'élastorésistivité des défauts ponctuels, c'est-à-dire la variation de la résistivité spécifique de ces défauts sous l'effet d'une contrainte uniaxiale extérieure
- les Chapitres III à VI qui décrivent des expériences de réorientation de défauts ponctuels (ayant la forme d'un haltère) sous l'effet d'une contrainte uniaxiale, cette réorientation étant observée par mesure de la résistivité.

L'élastorésistivité (E.R.) est une mesure récente et peu utilisée. Le Chapitre I est donc consacré à sa présentation. Après quelques définitions et une description du dispositif expérimental, nous ferons un tour d'horizon de mesures d'E.R. diverses en montrant sur plusieurs exemples très différents combien l'origine et donc les utilisations de l'E.R. peuvent être variées.

Au Chapitre II nous entrons dans le vif du sujet et étudions l'E.R. des défauts ponctuels créés par irradiation aux électrons dans le cuivre. Nous comparons ces résultats à ceux obtenus par VON STEBUT avec des neutrons rapides dans le même métal.

Nous avons ensuite, dans le molybdène cette fois, cherché l'influence d'une contrainte uniaxiale sur la création, l'évolution et la guérison des défauts ponctuels détectés par des mesures de résistivité (Chapitre III). Nous avons notamment observé des phénomènes anélastiques, que nous attribuons à la réorientation sous contrainte d'un interstitiel dissocié en forme d'haltère (Chapitre IV). Le Chapitre V est consacré à un modèle décrivant les cinétiques des réorientations observées et permettant d'interpréter les courbes relaxation-temps trouvées au Chapitre IV. Ce modèle est étayé par des calculs numériques d'énergie d'interstitiels pour diverses orientations en présence d'une contrainte (Chapitre VI).

NOTATIONS DES CHAPITRES I et II

(Elastorésistivité des défauts ponctuels)

Les notations sont en général explicitées dans le texte. Toutefois nous avons rassemblé ici les plus fréquentes pour pallier les oublis éventuels.

ε : déformation élastique de l'échantillon suivant la direction de la contrainte uniaxiale : $\varepsilon = \frac{\delta \ell}{\ell}$

ℓ : est la longueur de l'échantillon

s : section de l'échantillon

R : résistance de l'échantillon

ρ : résistivité de l'échantillon

δx : désigne en général la variation de la grandeur x sous l'effet de la contrainte tandis que

Δx : désigne en général la variation de x sous l'effet de l'irradiation

K : coefficient d'élastorésistance uniaxiale $K = \frac{1}{\varepsilon} \frac{\delta R}{R}$

k : coefficient d'élastorésistivité uniaxiale $k = \frac{1}{\varepsilon} \frac{\delta \rho}{\rho}$

χ : élastorésistivité uniaxiale $\chi = \frac{\delta \rho}{\varepsilon}$

F : force appliquée à l'échantillon

σ : contrainte appliquée

E : module de Young

ν : coefficient de Poisson

C_D : concentration du défaut D

ρ_D : résistivité spécifique du défaut D

χ_D : élastorésistivité spécifique du défaut D $\chi_D = \frac{\delta \rho_D}{\varepsilon}$

k_D : coefficient d'élastorésistivité spécifique du défaut D : $k_D = \frac{1}{\varepsilon} \frac{\delta \rho_D}{\rho_D}$

Φ : flux intégré de particules.

CHAPITRE I

ELASTORESISTIVITE - GENERALITES

I.1 - DÉFINITIONS

I.1.1 - Définition générale

I.1.2 - Elastorésistivité uniaxiale - Contrainte uniaxiale

I.1.2.1 - Définition de la déformation

I.1.2.2 - Effet de la déformation

I.1.2.3 - L'élastorésistivité uniaxiale

I.2 - MÉTHODE DE MESURE

I.2.1 - Machine de traction

I.2.2 - La mesure de l'élastorésistivité

I.3 - EXEMPLES D'UTILISATION ET D'ORIGINE DE L'ÉLASTORÉSISTIVITÉ

I.3.1 - Valeurs typiques d'élastorésistivités

I.3.2 - L'élastorésistivité des ferromagnétiques

I.3.3 - Elastorésistivité d'alliages amorphes

I.3.4 - Elastorésistivité d'alliages dilués

I.3.5 - Elastorésistivité de conducteurs unidimensionnels

I.3.6 - Elastorésistivité des défauts ponctuels

I.1 - DÉFINITIONS

I.1.1 - Définition générale

Lorsqu'on déforme élastiquement un métal, sa résistivité varie. Les déformations possibles sont en général faibles (de l'ordre de 10^{-3} ou 10^{-4}) et la variation de résistivité est, sauf exception, proportionnelle à la déformation et réversible comme elle.

On définit alors deux coefficients caractéristiques de cet effet :

- le coefficient d'élastorésistance, que l'on atteint expérimentalement :

$$K = \frac{1}{\varepsilon} \frac{\delta R}{R}$$

- et l'élastorésistivité $\chi = \frac{\delta \rho}{\varepsilon}$

(R est la résistance de l'échantillon, ρ sa résistivité, et ε la déformation élastique).

Pour que la définition soit complète, il est indispensable de préciser et le type de déformation et la direction du courant de mesure de la résistance. Par exemple, DELSARTE / 1 /, à la suite de BRIDGMAN, a défini des coefficients d'élastorésistance correspondant à différentes déformations élémentaires (non réelles), et pour des mesures de résistivité parallèles ou perpendiculaires à ces déformations. Ces coefficients sont :

- une élastorésistance dite parallèle lorsque seule la dimension parallèle au sens du courant est déformée ,
- une élastorésistance dite perpendiculaire lorsque seule une dimension perpendiculaire au sens du courant est déformée ,
- une élastorésistance de cisaillement, lorsque la direction parallèle au sens du courant subit un allongement ε, et les deux directions perpendiculaires des allongements $-\varepsilon/2$ (le volume reste alors constant).

De même, S. BOUFFARD / 2 / qui a mesuré l'élastorésistivité de conducteurs unidimensionnels (donc fortement anisotropes !) a défini des coefficients d'élastorésistivité du type :

$$k^{d_1}_{d_2} = \frac{\partial \ln \rho_{d_1}}{\partial \varepsilon_{d_2}}$$

où ρ est la résistivité mesurée le long de la direction d_1,
et ε la déformation suivant la direction d_2.

Les coefficients expérimentaux sont alors décomposés suivant ces coefficients d'élastorésistances élémentaires.

La piézorésistivité est un cas particulier de l'élastorésistivité, mais la déformation est alors une déformation isotrope et on mesure la variation de résistivité par rapport à la contrainte et non à la déformation.

Pour toutes les mesures qui suivent, l'élastorésistivité mesurée, dite élastorésistivité uniaxiale, correspondra à une traction uniaxiale dans la direction du courant de mesure.

I.1.2 - Elastorésistivité uniaxiale - Contrainte uniaxiale

Les échantillons utilisés pour ces expériences sont en général de forme allongée, avec une longueur ℓ de quelques centimètres et une section s faible constante (quelques 10^{-2} mm^2). Par le moyen d'une machine de traction, j'applique sur ces échantillons une traction uniaxiale σ dirigée, comme le courant, dans le sens de la longueur. La contrainte est choisie proche de la limite élastique pour obtenir un effet maximum. Elle est uniforme dans tout l'échantillon.

I.1.2.1 - Définition de la déformation

Les déformations élastiques des corps que nous étudions sont toujours suffisamment faibles (10^{-4} à 10^{-3} au maximum) pour que l'utilisation que nous faisons dans toute la suite de l'élasticité linéaire soit justifiée.

Dans un repère orthonormé (Ox, y, z) dont l'axe z est parallèle à la contrainte (voir la figure 1), on peut écrire $\sigma_{zz} = \sigma = \frac{F}{s}$, et tous les autres σ_{ij} sont nuls. Dans ce cas, pour un corps isotrope (polycristal sans texture marquée par exemple), l'élasticité linéaire permet d'écrire pour les déformations :

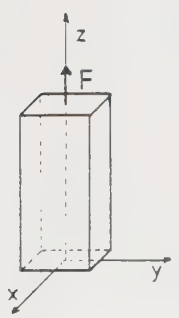


Figure 1

$$\varepsilon_{zz} = \varepsilon = \frac{\sigma}{E} \quad \text{et} \quad \varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = -\nu\,\varepsilon$$

où ν et E sont respectivement le coefficient de Poisson et le module de Young de l'échantillon. Tous les autres ε_{ij} sont nuls.

Pour un échantillon anisotrope (monocristal par exemple, ou polycristal présentant une texture marquée), les déformations s'expriment de façon moins simple en fonction des constantes élastiques S_{ij} ou C_{ij}.

En particulier l'axe de la contrainte n'est pas toujours un axe principal de la déformation. Dans ce cas on ne peut plus parler de module de Young ou de coefficient de Poisson.

Cependant lorsque la contrainte est appliquée dans certaines directions simples $\vec{K}$ d'un cristal cubique (<100>, <110>, <111>) on peut encore écrire $\varepsilon_{zz} = \varepsilon(\vec{K}) = \frac{\sigma}{E(K)}$. En choisissant cette fois pour axes Ox et Oy des directions principales, on obtient deux coefficients de Poisson :

$$\varepsilon_{xx} = - \nu (K,x) \varepsilon$$

$$\varepsilon_{yy} = - \nu (K,y) \varepsilon$$

Les déformations rencontrées dans la suite seront toutes de ce type.

En Annexe I figure le calcul détaillé des déformations d'un monocristal cubique soumis à une contrainte uniaxiale dans une direction $\vec{K}$, et son application à $\vec{K}$ = <110>. C'est en effet le cas des monocristaux de molybdène étudiés dans les Chapitres III, IV et V, et ce calcul servira à des déterminations d'énergie de configuration de défauts dans une matrice déformée (Chapitre V).

A titre d'exemple, le molybdène est un cristal cubique d'anisotropie moyenne (le coefficient $\frac{2C_{44}}{C_{11} - C_{12}}$ mesurant l'anisotropie, et qui vaut 1 dans le cas isotrope est de 0,77 pour Mo, de 2,4 pour Fe et de 3,2 pour Cu). Et pourtant :

* entre les directions <111> et <100>, E varie de 29 600 à 36 400 kg/mm^2, soit une différence de 23 % ;
* sous une traction dirigée suivant [110], les deux autres directions principales [1$\bar{1}$0] et [100] se déforment l'une de -0,237 ε, l'autre de -0,385 ε.

I.1.2.2 - Effet de la déformation

L'échantillon soumis à une traction uniaxiale subit :

- une augmentation globale de volume non négligeable puisque $\frac{\delta V}{V} = \frac{\delta \ell}{\ell} + \frac{\delta s}{s} = (1 - \nu_1 - \nu_2)$ est toujours positif et de l'ordre de 0,3 ε à 0,4 ε ,
- une distorsion de la maille, puisque les distances interatomiques augmentent dans la direction de la contrainte et diminuent dans les directions perpendiculaires.

I.1.2.3 - L'élastorésistivité uniaxiale

La résistance de l'échantillon est $R = \rho \frac{\ell}{s}$, où ρ est la résistivité, ℓ la largeur, s la section.

Sa variation est donc : $\frac{\delta R}{R} = \frac{\delta \rho}{\rho} + \frac{\delta \ell}{\ell} - \frac{\delta s}{s} = \frac{\delta \rho}{\rho} + (1 + \nu_1 + \nu_2) \varepsilon$,
ν_1 et ν_2 étant les coefficients de Poisson "principaux",

soit : $\frac{\delta R}{R} = \frac{\delta \rho}{\rho} + (1 + 2 \nu) \varepsilon$ pour un polycristal.

Le coefficient d'élastorésistance mesuré est $K = \frac{1}{\varepsilon}\frac{\delta R}{R} = \frac{1}{\varepsilon}\frac{\delta \rho}{\rho} + (1 + 2\nu)$ et l'on en déduit l'élastorésistivité :

$$\chi = \frac{\delta \rho}{\varepsilon} = \left[K - (1 + 2\nu) \right] \times \rho$$

I.2 - MÉTHODE DE MESURE

I.2.1 - Machine de traction

La contrainte est produite par une machine de traction de très petites dimensions (diamètre 18 mm, longueur totale 180 mm) (voir figure 2).

Cette machine est semblable à celle conçue pour les irradiations aux neutrons par R.R. CONTE et J. VON STEBUT (décrite en détail dans / 3 /). Une image par radiographie de neutrons de la capsule de VON STEBUT (figure 3) met en évidence les éléments essentiels communs à ces machines :

- un soufflet en inox se déforme linéairement avec la pression d'hélium qu'on lui impose, et crée la contrainte (car son allongement est aussi proportionnel à la contrainte à pression donnée). Ce soufflet doit être étalonné séparément ;
- ce mouvement est transmis à l'axe A à un mors mobile M1 ;
- l'échantillon est fixé entre le mors mobile M1 et un mors fixe réglable M2 ;
- sur l'axe A est fixé le noyau de fer doux d'un capteur linéaire inductif de déplacement. Il mesure les déplacements de l'axe A et donc du mors M1. Lorsque l'échantillon est détendu, il donne donc le déplacement libre du soufflet sous pression ; lorsque l'échantillon est tendu, il mesure sa déformation.

La mesure simultanée de la pression dans le soufflet (donc de la force exercée) et de la résistance électrique de l'échantillon, en fonction de sa déformation donne accès :

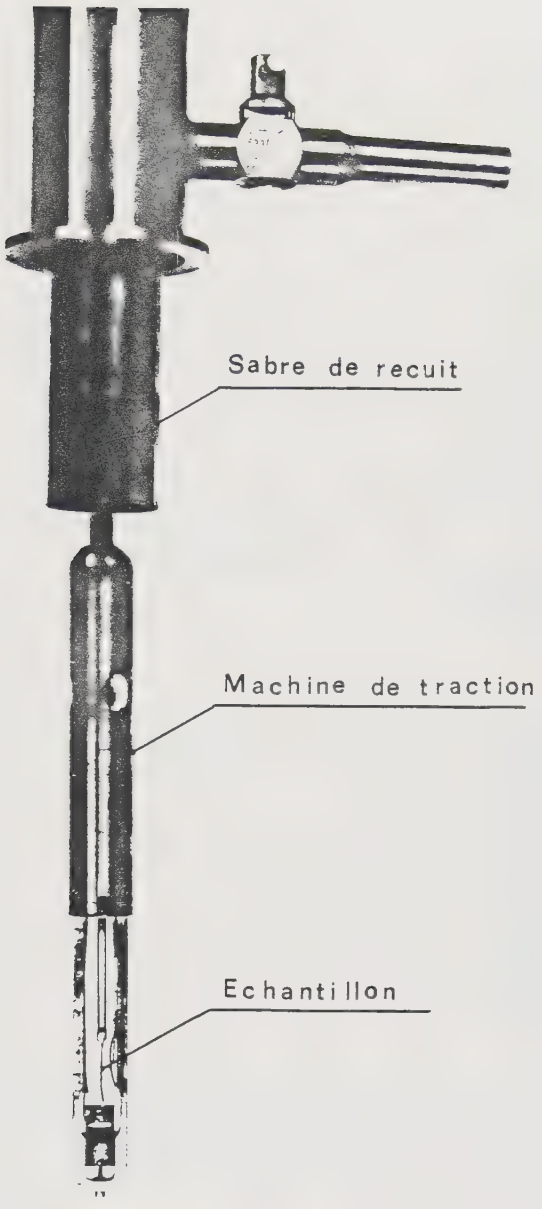
- à la courbe de traction : force en fonction du déplacement,
- à l'élastorésistance : résistance en fonction de la déformation.

La figure 4 montre un exemple de courbe de traction obtenue avec cette micromachine :

. dans la zone 1, l'échantillon est détendu. La pente observée est due au soufflet. Ayant mesuré par ailleurs la flexibilité sous pression du soufflet $f_p = \frac{\Delta p(\text{bars})}{\Delta \ell(\text{mm})}$ nous utilisons cette zone pour étalonner le capteur de déplacement et son pont amplificateur.

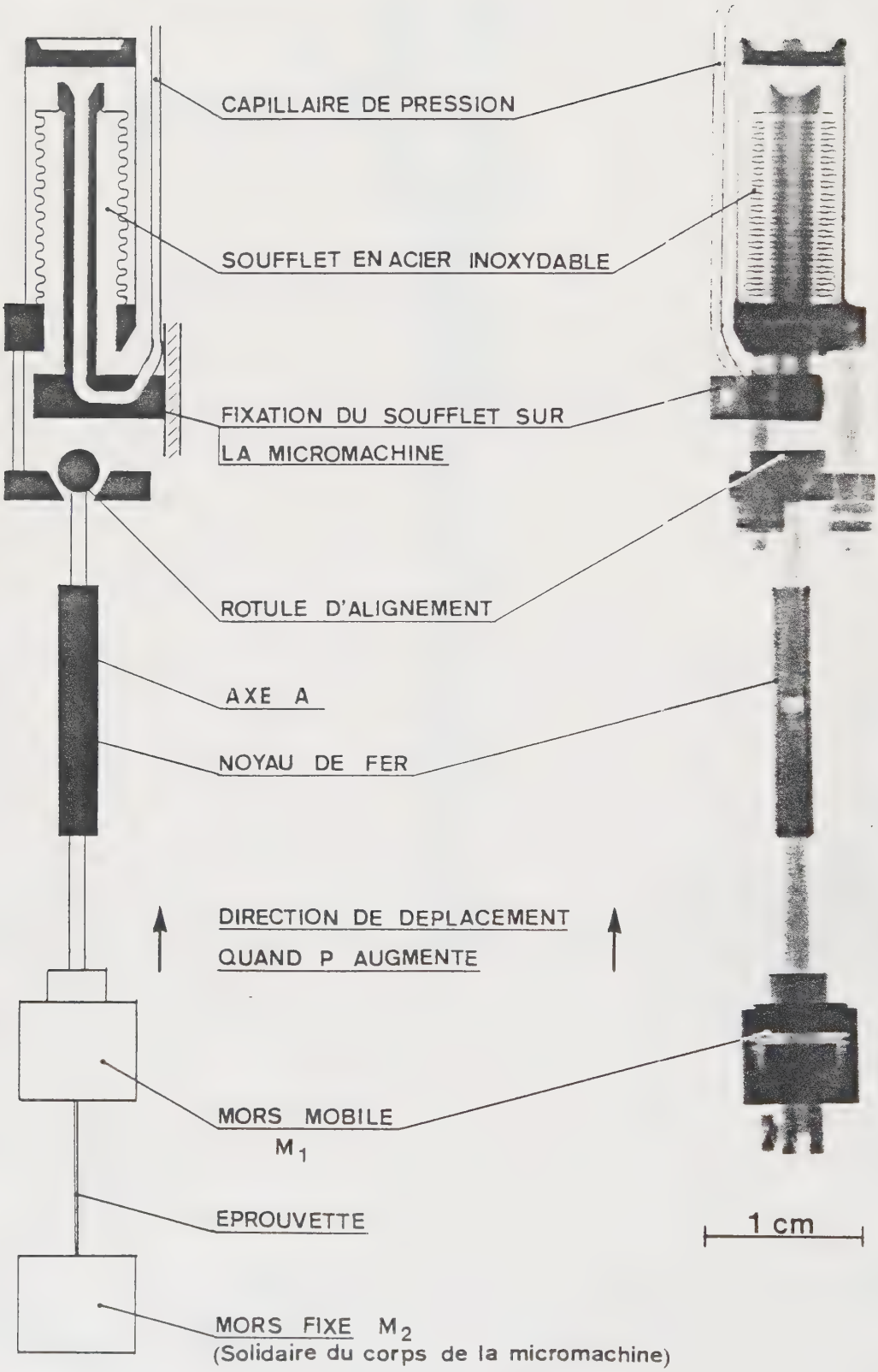
. la zone 2 correspond à la traction de l'échantillon.

L'échantillon ayant de loin la section la plus faible contribue pratiquement seul à la déformation x.



- Figure I -

Machine de traction pour irradiation aux électrons, avec son sabre de recuit.



- Figure 2 -

Schéma et neutrographie des éléments de la micromachine de traction engendrant la force de traction et la déformation de l'éprouvette (J. VON STEBUT)

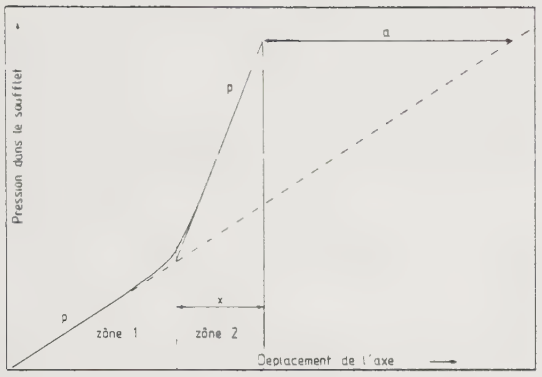


Figure 4 - Courbe de traction typique.

D'autre part, la distance a est la différence entre les positions du soufflet s'il est libre et lorsqu'il tend l'échantillon. On obtient donc la force exercée entre les deux par $F = k\,a$, où $k = f_c$ (raideur du soufflet) est connue par l'étalonnage et est indépendante de la pression.

La différence entre les pentes 1 et 2, $\frac{\delta p}{p} = \frac{p_2 - p_1}{p_1}$ mesure le module de Young de l'échantillon (en fonction de ses dimensions) :

$$E = f_c \times \frac{\delta p}{p} \times \frac{\ell}{s}$$

I.2.2 - La mesure de l'élastorésistivité

Les coefficients $K = \frac{1}{\varepsilon}\frac{\delta R}{R}$ sont en général de l'ordre de 1 à 3. Pour des déformations de 10^{-3} ou 10^{-4} cela donne des variations de résistance de quelques 10^{-4}, sur des résistances souvent faibles, car les échantillons purs ont un bon rapport de résistivité ($\frac{R\ 300}{R\ 4} \simeq 1\ 000$ pour nos échantillons de cuivre).

Je ne mesure donc pas directement la résistance de l'échantillon mais je la compare à celle d'un témoin. L'échantillon et le témoin sont montés en opposition sur un pont de Kelvin. Le courant de déséquilibre du pont, amplifié, mesure alors la variation de résistance de l'échantillon.

Le signal obtenu est tracé en fonction du déplacement de l'échantillon (mesuré par le capteur) et la pente de cette droite donne l'élastorésistance.

Les courbes de traction et l'élastorésistance sont tracées simultanément. La figure 5 en montre un exemple.

En Annexe II figure un exposé détaillé de la méthode expérimentale de mesure de K.

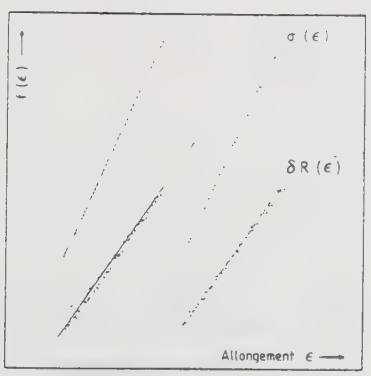


Figure 5 - Courbes de traction et d'élastorésistivité (expérience Cu 2 après irradiation et recuit vers 22,5 K). Les droites sont tracées lors du dépouillement.

I.3 - EXEMPLES D'UTILISATION ET D'ORIGINE DE L'ÉLASTORÉSISTIVITÉ

Avant de montrer par plusieurs exemples très différents (alliages ferromagnétiques, amorphes, alliages dilués à base de cuivre, défauts ponctuels) combien l'origine de l'élastorésistivité peut être variée, nous donnerons pour fixer les idées des élastorésistivités typiques mesurées dans des conducteurs divers.

I.3.1 - Valeurs typiques d'élastorésistivités

Le tableau I donne des valeurs de coefficients d'élastorésistance $K = \frac{1}{\varepsilon} \frac{\delta R}{R}$ mesurés à 4 K, 77 K, ou température ordinaire :

TABLEAU I

Matériau	4 K	77 K	≅ 300 K	Source
Fe		1,46	1,2	J. PONSOYE / 6 /
Ni		- 3,3		J. PONSOYE / 6 /
Cu (écroui)	1,8	3,0	3,0	G. DELSARTE / 9 /
Mo	1,30 *		2,44 * **	* 20 K, J. DURAL et al. non publié ** KUCZYNSKI / 42 /
W		2,9	2,6	J. PONSOYE / 6 /
Pt		1,0	2,0	J. PONSOYE / 6 /

Nous pouvons y adjoindre les mesures d'élastorésistance de divers sels conducteurs de TCNQ de S. BOUFFARD et al. / 2 /.

Il s'agit de matériaux fortement anisotropes, et les auteurs ont donc défini pour les trois axes cristallographiques a, b et c* des coefficients :

$$K_i^j = (\delta \ln \rho^j) / \delta\varepsilon_i$$

où ρ^j est la résistivité mesurée suivant l'axe j,
ε_i la déformation suivant le direction i.

Ces coefficients du type $\frac{1}{\varepsilon} \frac{\delta\rho}{\rho}$ diffèrent de l'élastorésistance K par le terme géométrique $1 + 2\nu$ où les auteurs ont supposé le coefficient de Poisson ν compris entre 0,25 et 0,40.

S. BOUFFARD et al. obtiennent pour TTF-TCNQ :

$$K_a^b \cong 16 \qquad K_b^b \cong 34 \qquad \text{et} \qquad K_{c^*}^b \cong 24$$

donc des coefficients très élevés par rapport à ceux des métaux toujours proches de + 2 (sauf pour Ni).

I.3.2 - L'élastorésistivité des ferromagnétiques

L'élastorésistivité d'alliages Fe-Ni de concentrations variables a été étudiée en détail à température ordinaire par L.W. Mc KEEHAN / 4 / dès 1930 et par R.M. BOZORTH / 5 / en 1946. Nous avons retrouvé des résultats semblables sur des amorphes ferromagnétiques à 4 K, 77 K et 300 K (voir § 3.3).

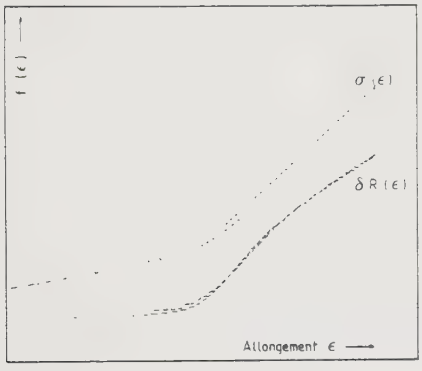


Figure 6 - Courbes de traction et d'élasto-résistance de $Fe_{80}B_{20}$ à 77 K.

Les traits caractéristiques sont :

- la variation de résistance n'est pas linéaire avec la contrainte (voir figure 6) ,
- le signe de cette variation est lié à celui de la magnétostriction (qui s'inverse pour une concentration atomique d'environ 80 % de Ni). Une magnétostriction λ_s positive correspond à une augmentation de résistivité de l'échantillon sous contrainte. Inversement on peut observer lorsque la magnétostriction est négative des élastorésistivités fortement négatives allant jusqu'à la diminution de la résistance sous contrainte (PONSOYE / 6 / a obtenu K = - 3,3 pour du nickel à 77 K) ,
- les coefficients d'élastorésistivité $\frac{\delta\rho}{\varepsilon\rho}$ initiaux ($\varepsilon \cong 0$) sont élevés (de l'ordre de - 3 contre 1 environ pour les métaux usuels, voir le tableau I).

Pour un alliage de magnétostriction négative, les effets d'un champ magnétique et d'une contrainte sont opposés. BOZORTH a pu, en mesurant des couples (champ, contrainte) dont les effets se compensent, établir un modèle quantitatif simple fondé sur une réorientation des domaines magnétiques.

Dans le cas de matériaux ferromagnétiques, l'élastorésistivité semble donc surtout sensible à l'évolution sous contrainte des domaines.

I.3.3 - Elastorésistivité d'alliages amorphes

Il n'existe encore que peu de mesures d'élastorésistivité sur des alliages métalliques amorphes :

- d'abord celles de LESUEUR / 7 / en 1971 sur : $Pd_{80}\ Si_{20}$
- celles de AKAIKE et SUNA en 1977 sur : $Pd_{78}\ Si_{16}\ Cu_6$ et $Pd_{78}\ Si_{17}\ Fe_5$ (résultats non publiés)
- enfin, celles que nous avons effectuées, P. BOIS et moi / 8 / sur : $Cu_{60}\ Zr_{40}$, $Fe_{80}\ B_{20}$ et $Fe_{78}\ B_{20}\ Mo_2$, le premier de ces alliages présentant la particularité de ne pas contenir de métalloïdes.

Les deux alliages ferromagnétiques Fe-B et Fe-Mo-B présentent une élastorésistivité positive élevée et non linéaire (voir figure 6). Le plus ferromagnétique (Fe-B) a aussi l'élastorésistivité la plus élevée. Dans ce cas l'élastorésistivité n'est pas spécifique de l'état amorphe, mais de l'état magnétique (lequel semble indépendant de la structure cristalline ou non).

Par contre, nos mesures sur Cu-Zr (de même que celles de LESUEUR et de AKAIKE et al) donnent une élastorésistivité nulle ou au moins faible devant l'effet géométrique. En effet, la valeur mesurée est $K \cong 1{,}7$. Pour les échantillons isotropes, de section constante s et de longueur ℓ, on a :

$$K = \frac{1}{\varepsilon}\left(\frac{\delta\rho}{\rho} + \frac{\delta\ell}{\ell} - \frac{\delta s}{s}\right) = \frac{\chi}{\rho} + (1 + 2\nu)$$

Les valeurs du coefficient de Poisson ν de ces alliages ne sont en général pas connues, mais elles diffèrent probablement peu de 0,35. On en déduit donc que l'élastorésistivité est pratiquement nulle dans ces alliages.

I.3.4 - Elastorésistivité d'alliages dilués

DELSARTE (/ 1 / et / 9 /) a mesuré l'élastorésistivité d'alliages dilués à base de cuivre, pour divers solutés (In, Ge, Ga, Sn, Cd, Zn, Au).

Ses résultats apparaissent clairement sur les figures 7 et 8 qui représentent :

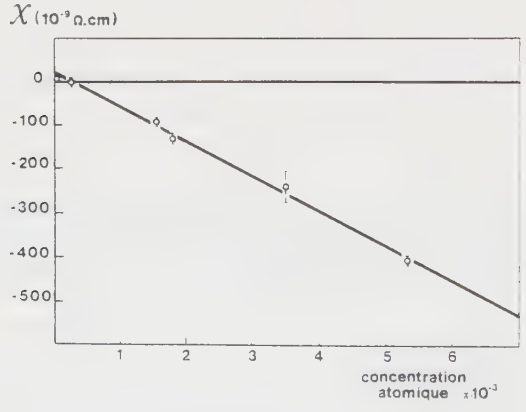


Figure 7 - Elastorésistivité d'un alliage dilué Cu Au en fonction de la concentration atomique d'or (d'après DELSARTE / 1 /).

. Figure 7 : l'élastorésistivité d'alliages Cu Au en fonction de la concentration d'or,

. Figure 8 : l'élastorésistivité d'alliages dilués divers (à base de cuivre) en fonction de leur résistivité résiduelle (repérant leur concentration)

et qui montrent :

1) que l'élastorésistivité est proportionnelle à la concentration en impuretés;

ceci découle de la règle de Matthiessen : $\rho = \rho_o + C_I \rho_I$

où C_I est la concentration d'impureté,
ρ_I la résistivité spécifique de l'impureté.

L'effet de la traction est :

$$\frac{\delta\rho}{\varepsilon} = \frac{\delta\rho_o}{\varepsilon} + C_I \frac{\delta\rho_I}{\varepsilon}$$

soit : $\chi = \chi_o + C_I \chi_I$ (règle de Matthiessen dérivée).

DELSARTE obtient alors une élastorésistivité spécifique de l'impureté $\chi_I = \frac{\delta\rho_I}{\varepsilon}$, pente des droites de la figure 7 et un coefficient d'élastorésistivité spécifique $k_I = \frac{1}{\varepsilon} \frac{\delta\rho_I}{\rho_I}$, pente des droites de la figure 8.

2) que pour tous les alliages étudiés, l'élastorésistivité spécifique est négative, k_I étant de l'ordre de -1.

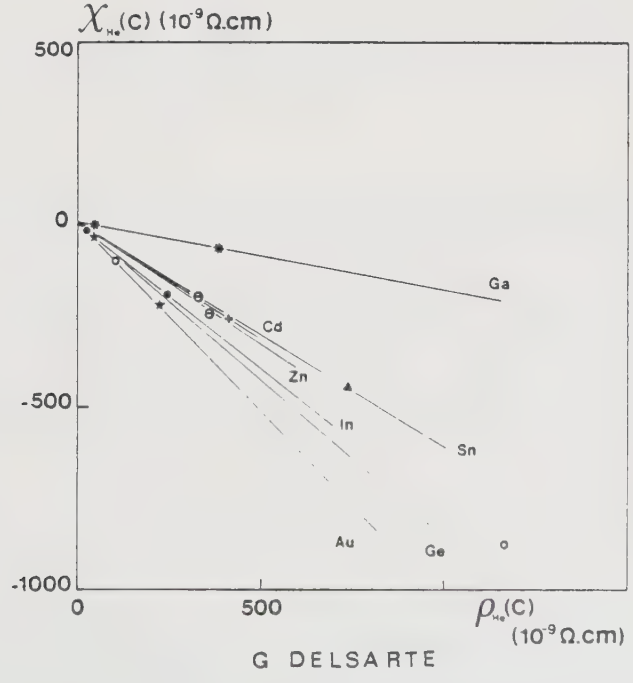


Figure 8 - Elastorésistivité à 4 K d'alliages divers à base cuivre en fonction de la résistivité induite par l'impureté.

DELSARTE a donc montré que les impuretés diluées (dans une matrice de cuivre) ont une élastorésistivité spécifique, de même qu'elles ont une résistivité spécifique :

$$\chi_I = \frac{\delta\rho_I}{\varepsilon}$$

Quelle est l'origine de cette élastorésistivité ?

Des éléments de réponse sont fournis par deux calculs de LESUEUR / 10 /, qui a déterminé l'effet d'une déformation uniaxiale à volume constant d'un métal sur sa résistivité.

L'élastorésistivité est alors la somme de cet effet et de l'effet d'une augmentation isotrope de volume (trouvé dans la littérature).

* Un premier modèle permet d'obtenir l'élastorésistivité totale pour la déformation à volume constant :

- le potentiel de l'impureté, assimilé à un puits carré sphérique, se déforme en un puits carré ellipsoïdal de la même façon que le cristal,
- l'effet de taille de l'impureté intervient à travers la charge à écranter dans la règle de Friedel.

Le calcul est alors parallèle à celui de la résistivité sans contrainte, mais compliqué par la non-sphéricité du potentiel.

Les résultats, même s'ils ne sont pas en parfait accord avec les valeurs expérimentales, donnent toujours le bon ordre de grandeur de l'élastorésistivité spécifique.

* Dans un deuxième calcul, LESUEUR isole l'effet des déplacements atomiques en superposant au potentiel $V_0(r)$ de l'impureté dans une matrice non relaxée le potentiel $V_1(r)$ dû aux déplacements atomiques autour de l'impureté.

Les déformations sont toutes données par l'élasticité linéaire.

En appliquant ce calcul à une matrice avec ou sans contrainte extérieure appliquée, on isole la part de la modification des relaxations autour du défaut.

Le résultat est que cet effet est petit devant l'effet global (obtenu par le premier calcul ou par les résultats expérimentaux).

Entre les deux sources possibles étudiées par LESUEUR, l'élastorésistivité d'une impureté dans le cuivre mesurerait donc la modification de son potentiel sous l'effet de la contrainte beaucoup plus que les déplacements des atomes voisins. Mais d'autres facteurs pourraient aussi intervenir qui n'ont pas été évalués (par exemple une anisotropie du temps de relaxation qui varierait sous l'effet de la déformation de la surface de Fermi).

I.3.5 - Elastorésistivité de conducteurs unidimensionnels

S. BOUFFARD et al. / 2 / ont mesuré par une technique originale les coefficients d'élastorésistivité $k_i^j = \partial \ln \rho_j / \partial \varepsilon_i$ (où i est la direction de la déformation considérée, et j celle du courant de mesure) pour les trois axes a, b, c* de ces conducteurs. L'échantillon est collé comme une jauge de contrainte sur une poutre dont on impose la déformation, ce qui permet aussi des mesures transverses. Ces conducteurs organiques sont formés de longues chaînes suivant l'axe b, qui ont une "bonne" conductivité, et entre lesquelles il existe aussi une conductivité transversale beaucoup plus faible.

Grâce à ces résultats d'élastorésistivité et à des mesures de variation de l'anisotropie ρ_a/ρ_b sous déformation, S. BOUFFARD et al. ont pu confirmer que la conductivité transversale est proportionnelle au temps de collision longitudinal et montrer que les effets transversaux ne sont pas négligeables dans les expériences sous pression hydrostatique.

I.3.6 - Elastorésistivité des défauts ponctuels

L'élastorésistivité a aussi été utilisée pour étudier les défauts ponctuels dans le cuivre, par J. VON STEBUT / 11 /, / 12 /, / 13 /, pour des défauts créés par irradiation aux neutrons rapides, et par moi-même dans une partie de la présente étude pour des défauts créés par des électrons. Ces travaux sont détaillés au Chapitre II. Ils présentent un intérêt pour la connaissance des défauts ponctuels dans la mesure où on montre que :

- l'on peut définir une élastorésistivité spécifique moyenne (E.R.S.) des défauts ponctuels (comme pour les impuretés) :

$$\chi_D = \delta\rho_D / \varepsilon$$

  et que cette E.R.S. est positive et très différente suivant que les défauts sont créés par des neutrons rapides ou des électrons,

- au cours de recuits isochrones et pour les deux types d'irradiations, l'élastorésistivité induite se guérit complètement au stade I et devient même négative ; dans ces conditions on peut dire que l'interstitiel a une E.R.S. forte et positive et qu'un autre défaut a une E.R.S. négative

Ces mesures permettent donc de montrer :

- que la nature des défauts créés, à résistivité induite égale, par des neutrons rapides et par des électrons est très différente,
- que parmi les défauts créés par irradiation, l'interstitiel voit sa résistivité augmenter fortement sous contrainte, tandis qu'un autre défaut (la lacune ?) la voit diminuer.

CHAPITRE II

ELASTORESISTIVITE DES DEFAUTS D'IRRADIATION

II.1 - GÉNÉRALITÉS SUR LA MÉTHODE DE MESURE

II.1.1 - Les courbes de production
II.1.2 - Les courbes de recuit

II.2 - LES EXPÉRIENCES DE VON STEBUT AUX NEUTRONS RAPIDES

II.2.1 - Conditions d'irradiation
II.2.2 - Courbes de production
II.2.3 - Courbes de recuit
II.2.4 - Conclusions sur l'E.R. des défauts créés par les neutrons rapides

II.3 - IRRADIATIONS AUX ÉLECTRONS - LES DÉFAUTS CRÉÉS

II.3.1 - Conditions d'irradiation et sections efficaces
II.3.2 - Courbes de production de résistivité
II.3.3 - Les recuits isochrones (résistivité)
II.3.4 - Conclusion

II.4 - IRRADIATIONS AUX ÉLECTRONS : L'ÉLASTORÉSISTIVITÉ (E.R.)

II.4.1 - Méthode de mesure
II.4.2 - La production de l'élastorésistivité
II.4.3 - La restauration de l'élastorésistivité
II.4.4 - Conclusion

II.5 - DISCUSSION

II.5.1 - Quels sont les défauts présents au cours des expériences aux électrons ?
II.5.2 - Quels sont les défauts présents au cours des expériences aux neutrons rapides ?
II.5.3 - Qu'en déduire pour l'E.R.S. des défauts ?
II.5.4 - Différence des pentes des courbes de production
II.5.5 - Modèle
II.5.6 - Conclusion

L'élastorésistivité est une mesure peu habituelle. En particulier pour les expériences d'irradiation, la présentation des résultats, quoique calquée sur celle des mesures de résistivité, demande des explications. C'est pouquoi avant de rentrer dans le vif du sujet, les résultats des expériences aux neutrons rapides de J. VON STEBUT (§ II.2) et mes expériences aux électrons (§ II.3 et II.4), j'explique la façon dont les expériences sont conduites et la forme sous laquelle figurent les résultats au paragraphe II.1. Pour alléger ce chapitre, j'ai reporté en Annexe III les conditions expérimentales (dispositif d'irradiation, cryogénie, recuits, caractéristiques des échantillons).

II.1 - GÉNÉRALITÉS SUR LA MÉTHODE DE MESURE

Les défauts d'irradiation peuvent être étudiés par élastorésistivité comme ils le sont par résistivité, et ce sur les deux thèmes classiques :

- la production,
- le recuit.

II.1.1 - Les courbes de production

Pendant la phase de création de défauts, on peut interrompre l'irradiation (de façon à stabiliser la température). On mesure alors l'élastorésistivité χ de l'échantillon suivant la méthode décrite en I.2.2 à une température de référence T_o constante (en général 20 K), pour une concentration c de défauts. On obtient alors des courbes $\Delta\chi(c)$ qui sont les courbes de production d'élastorésistivité (voir la figure 9, page 19 par exemple).

II.1.2 - Les courbes de recuit

Lorsqu'on a atteint la concentration voulue de défauts, il est intéressant de recuire progressivement l'échantillon. En effet, en suivant parallèlement la résistivité et l'élastorésistivité au cours des recuits isochrones, on peut séparer l'effet des différents types de défauts.

On procède de la façon suivante (classique en résistivité) : l'échantillon est porté à une température $T > T_o$ pendant un temp Δt fixé (ici 10 mn), puis refroidi à la température de référence T_o. On mesure alors sa résistivité et son élastorésistivité.

On obtient donc des courbes $\Delta\rho(T)$ et $\Delta\chi(T)$ que l'on peut normaliser aux valeurs en fin d'irradiation $\Delta\rho_{max}$ et $\Delta\chi_{max}$, et qui sont les courbes de recuit isochrone de la résistivité et de l'élastorésistivité.

II.2 - Les expériences de Von Stebut aux neutrons rapides

J. VON STEBUT / 11, 12, 13 / a le premier mesuré l'élastorésistivité de défauts d'irradiation, dans du cuivre irradié aux neutrons rapides.

II.2.1 - Conditions d'irradiation

Ces conditions sont naturellement décrites plus en détail dans / 11 /. VON STEBUT a utilisé le réacteur TRITON (Fontenay-aux-Roses) et le dispositif cryogénique VINKA (décrit dans / 14 /), maintenant l'échantillon dans un bain d'hydrogène liquide à 21 K environ.

Le flux total est d'environ 5.10^{17} neutrons rapides/cm^2 correspondant à un endommagement $\Delta\rho \cong 60$ nΩcm, soit à une concentration équivalente de paires de Frenkel d'environ $2{,}4.10^{-4}$ (ρ_{PF} = 2,5 μ cm/% / 15 /).

Les échantillons sont des fils de cuivre Material Research Corporation, de diamètre 138 μm et de résistivité résiduelle à 4 K environ 2.10^{-9} Ωcm après recuit ou 4 ou 5.10^{-9} Ωcm à l'état brut de tréfilage.

II.2.2 - Courbes de production

La figure 9 représente l'élastorésistivité de trois échantillons bruts en fonction de la concentration de défauts (répérée par l'augmentation $\Delta\rho$ de résistivité).

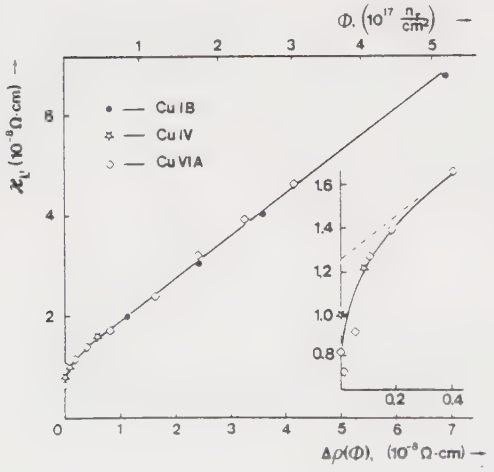


Figure 9 - Evolution de l'élastorésistivité au cours de l'irradiation aux neutrons rapides (d'après J. VON STEBUT / 11 /).

A partir d'un endommagement d'environ 2.10^{-9} Ωcm, l'élastorésistivité croît linéairement avec la concentration de défauts, ce qui dérive comme pour les alliages (§ I.3.4) de la loi de Matthiessen :

$$\rho = \rho_o + C_{PF}\,\rho_{PF}$$

VON STEBUT écrit donc :

$$\chi(\phi) = \chi_o + \chi_{PF} \times C_{PF}$$

où C_{PF} est la concentration en "paires de Frenkel",
ρ_{PF} la résistivité de la paire de Frenkel.

De même que les impuretés (§ I.3.4), les défauts d'irradiation ont alors une élastorésistivité spécifique (E.R.S.) moyenne :

$$\chi_{PF} = \frac{\delta\rho_{PF}}{\varepsilon}$$

et un coefficient d'élastorésistivité spécifique :

$$k_{PF} = \frac{1}{\varepsilon} \left(\frac{\delta\rho_{PF}}{\rho_{PF}} \right)$$

A l'opposé des impuretés de substitution étudiées par DELSARTE, les défauts créés par irradiation aux neutrons ont une élastorésistivité spécifique globalement positive. VON STEBUT a trouvé que cette valeur dépend de l'état métallurgique de l'échantillon :

$\chi_{PF} \cong \rho_{PF}$ pour les échantillons bruts de tréfilage,
$\chi_{PF} \cong 1{,}4\ \rho_{PF}$ pour l'échantillon recuit.

Il explique cet écart par des proportions différentes d'interstitiels et de lacunes libres créés dans les deux cas, en s'appuyant sur le fait que la vitesse de production de résistivité est elle aussi sensible à l'état d'écrouissage.

II.2.3 - Courbes de recuit

Les figures 10.a et 10.b de VON STEBUT montrent les recuits isochrones de résistivité et d'élastorésistivité (E.R.) des échantillons irradiés.

Les traits caractéristiques en sont que :

- l' E.R. diminue très fortement au cours du stade I.
  Ce stade correspond clairement à la guérison de paires de Frenkel par migration libre ou corrélée de l'interstitiel.
- au cours du stade II, l'E.R. est descendue en-dessous de son niveau initial. L'E.R.S. des défauts présents à ce moment est donc globalement négative (c'est-à-dire que l'un au moins de ces défauts a une E.R.S. négative).
- enfin, pendant tout le stade III et le stade IV, l'élastorésistivité n'évolue pas.

II.2.4 - Conclusions sur l'élastorésistivité des défauts créés par les neutrons rapides

VON STEBUT déduit donc des irradiations aux neutrons :

i) que les défauts créés aux neutrons ont une E.R.S. globale de l'ordre de ρ_{PF}.

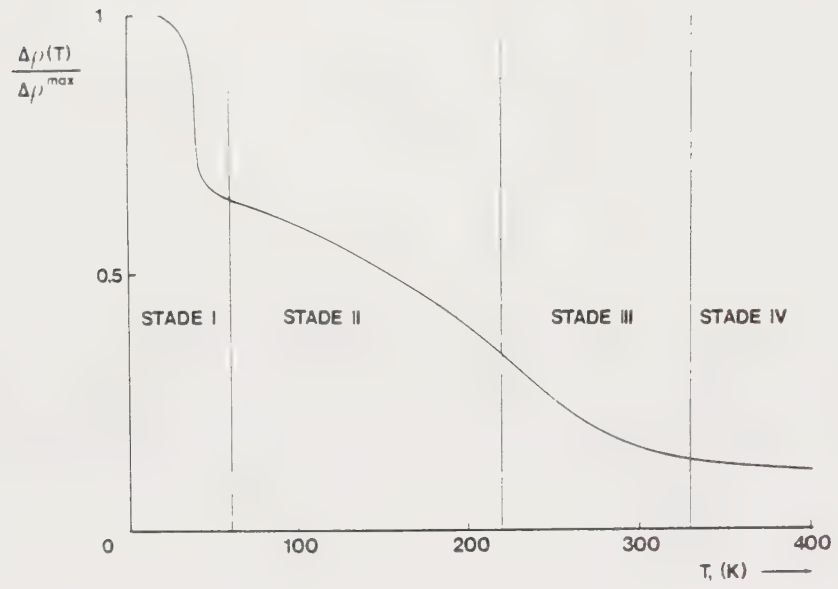


Figure 10.a - Résistivité.

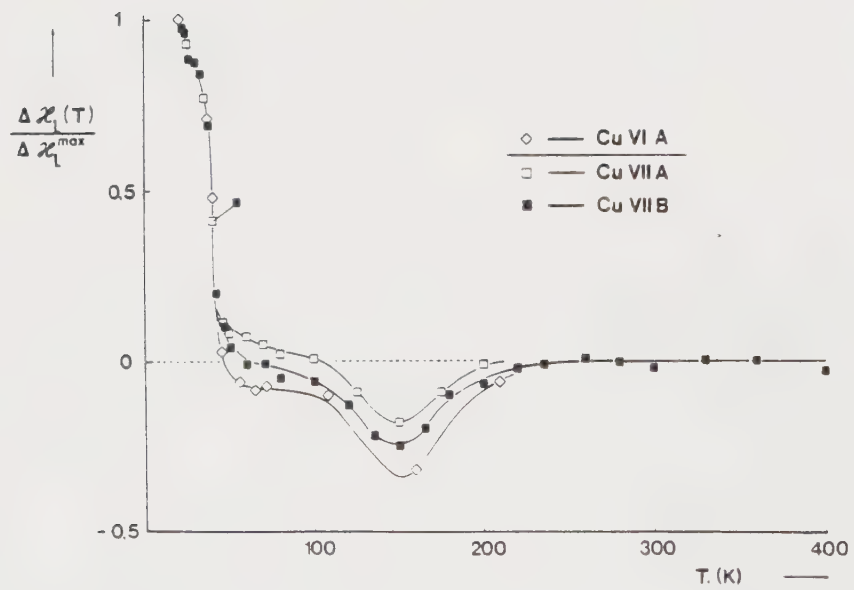


Figure 10.b - Elastorésistivité.

Figure 10 - Evolution au cours de recuits isochrones de la résistivité (10.a) et de l'élastorésistivité (10.b) induites par irradiation (normalisées à l'endommagement maximum $\Delta\rho_{max}$ ou $\Delta\chi_{max}$). D'après J. VON STEBUT / 11 /.

ii) que la lacune isolée qui, dans tous les modèles, migre au stade III ou IV a une E.R.S. nulle.

iii) donc que la chute d'E.R. au stade I est due uniquement à l'interstitiel, qui a alors une E.R.S. $\chi_I \simeq 3\ \rho_{PF}$ (au sous-stade I_D).

iv) que les défauts complexes créés par l'irradiation aux neutrons en même temps que les paires isolées ont un effet soit nul soit se compensant. En effet, si l'on produisait uniquement des paires de Frenkel isolées, on aurait :

$$\Delta\chi = C_I\ \chi_I + C_L\ \chi_L = C\chi_I \simeq 3\ C\ \rho_{PF}$$

et donc

$$\chi_{PF} \simeq 3\ \rho_{PF}. \qquad \text{Or} \qquad \chi_{PF} \simeq (1 \text{ à } 1,4)\ \rho_{PF}.$$

VON STEBUT considère donc que les défauts autres que l'interstitiel et la lacune isolés contribuent beaucoup plus à la résistivité qu'à l'élastorésistivité.

Le point délicat des interprétations précédentes tient dans la mauvaise définition des défauts créés par les neutrons : défauts ponctuels plus ou moins isolés, grappes de lacunes, amas d'interstitiels, éventuellement petites boucles. Il nous a donc semblé utile de reprendre ces expériences sur des paires de Frenkel isolées ; pour cela il suffit de créer les défauts par irradiation avec des électrons d'énergie supérieure au seuil de déplacement atomique. C'est ce que j'ai fait et que je décris dans les paragraphes suivants.

II.3 - Irradiations aux électrons : les défauts créés

II.3.1 - Conditions d'irradiation et sections efficaces

Les conditions expérimentales de nos expériences sont décrites dans l'Annexe III : dispositif d'irradiation, cryogénie, recuits, nature des échantillons. Les caractéristiques principales des trois échantillons utilisés sont toutefois résumées dans le Tableau II suivant.

TABLEAU II

Caractéristiques des échantillons

Echantillon	Etat	ρ_o à 4,2 K nΩcm	$\delta\rho$ nΩcm	C_{PF}
Cu 1	brut	4,8	25,0	10^{-4}
Cu 2	brut	4,5	50,0	2.10^{-4}
Cu 3	recristallisé puis pré-irradié	2,4 (pré-irradié)	9,95	4.10^{-5}

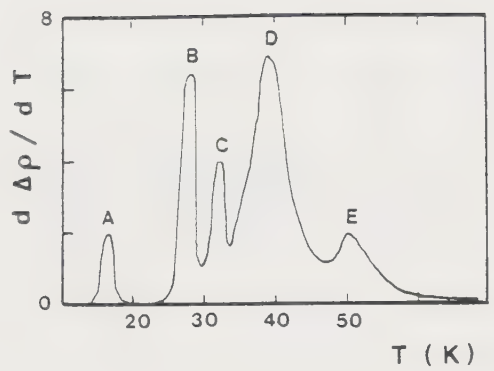


Figure 11 - Courbes dérivées des recuits isochrones du cuivre au stade I (d'après J.W. CORBETT et al. / 16 /).

Les irradiations des échantillons Cu 1 et Cu 2 dans l'hydrogène liquide ont eu lieu à 21,8 K. Les courbes dérivées des recuits isochrones rassemblées dans l'article de D.K. HOLMES / 16 / (d'après J.W. CORBETT et al., et R.M. WALKER) montrent qu'on se trouve alors au-dessus du sous-stade I_A des paires proches, et bien en-dessous des sous-stades suivants I_B, I_C, I_D, I_E (voir figure 11).

La température d'irradiation de Cu 3 est comprise entre 5 ou 6 K (température indiquée par le thermocouple) et 8 K (température à laquelle un échauffement de l'échantillon aurait été évident sur la résistance), donc en-dessous du sous-stade I_A.

Pour ces trois expériences, l'énergie des électrons est de 2,5 MeV (dont il faut retrancher environ 80 keV perdus dans les 20 µm d'inox de la première fenêtre de la queue et les 2 millimètres d'hydrogène ou d'hélium précédant l'échantillon).

Nous avons reproduit, figure 12, les sections efficaces de déplacement de primaire $\sigma_d(p)$ et totale σ_d calculées par O.S. OEN / 17 / pour le cuivre avec un seuil T_d = 20 eV (valeur la plus proche de celle donnée par P. VAJDA dans son article de revue T_d = 19 eV / 18 /).

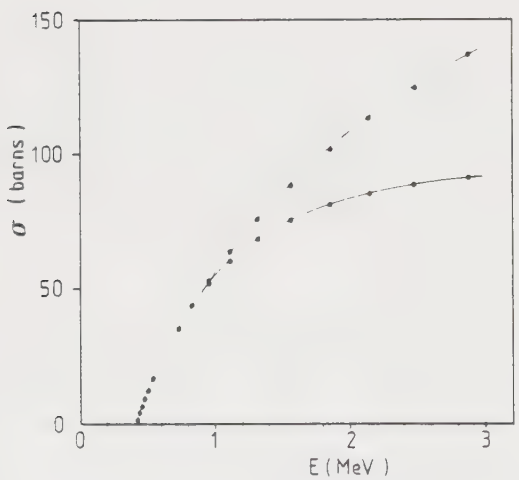


Figure 12 - Sections efficaces de déplacement de primaire (en bas) et totale dans le cuivre (d'après O.S. OEN / 17 /).

A 2,5 MeV $\sigma_d^{(p)}$ vaut 89 barns et σ_d 126 barns environ, ce qui donne un nombre moyen de déplacements par primaire ν (2,5 MeV) ≅ 1,4.

Le critère de KINCHIN et PEASE / 19 / fournit la valeur maximale de ce nombre de déplacements

$$\nu_{max} = \frac{T_m}{2\,E_d} \cong 7{,}8$$

(T_m : énergie cédée par choc de plein fouet, soit ici environ 300 eV).

Nous n'avons donc pas créé dans le cuivre que des paires vraiment isolées, mais, pour chaque primaire, des ensembles de 1 à 7 paires de Frenkel, avec une moyenne de 1,4 paire de Frenkel par "cascade" : il y a donc plus de paires isolées que de tous les autres complexes réunis.

D'autre part, l'endommagement maximum des échantillons correspond à des concentrations de $0{,}4.10^{-4}$ à 2.10^{-4}, où les "cascades" sont donc encore éloignées les unes des autres et indépendantes (la résistivité de la paire de Frenkel utilisée est : ρ_{PF} = 2,5 μΩcm/% / 15 /).

II.3.2 - Courbes de production de résistivité

Les courbes donnant la production de résistivité Δρ en fonction de la dose ϕ au cours des irradiations sont reportées sur la figure 13 pour les trois expériences.

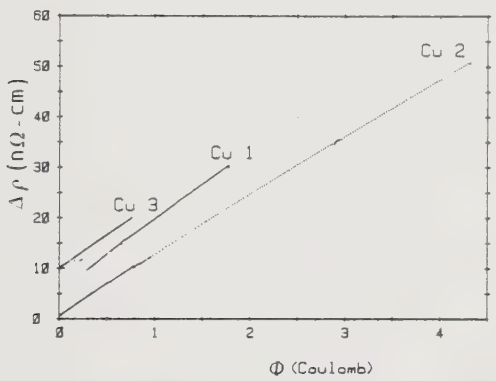


Figure 13 - Accroissement de résistivité au cours de l'irradiation pour les trois expériences (la courbe de Cu 1 a été décalée en Δρ de +5 nΩcm, celle de Cu 3 de + 10 nΩcm).

Nous avons de même tracé les courbes dérivées en figure 14. En abscisse se trouve l'endommagement Δρ à la dose ϕ, et en ordonnée la pente de la droite de régression de la portion de la courbe de production Δρ(ϕ) correspondant à la période ϕ - Δϕ, ϕ + Δϕ. On obtient ainsi une approximation de la valeur de la dérivée $\frac{d\rho}{d\phi}$ pour une dose ϕ.

Ces tracés sont classiques.

Les courbes de production présentent une courbure légère. Cette courbure est due aux recombinaisons "spontanées " de défauts créés trop

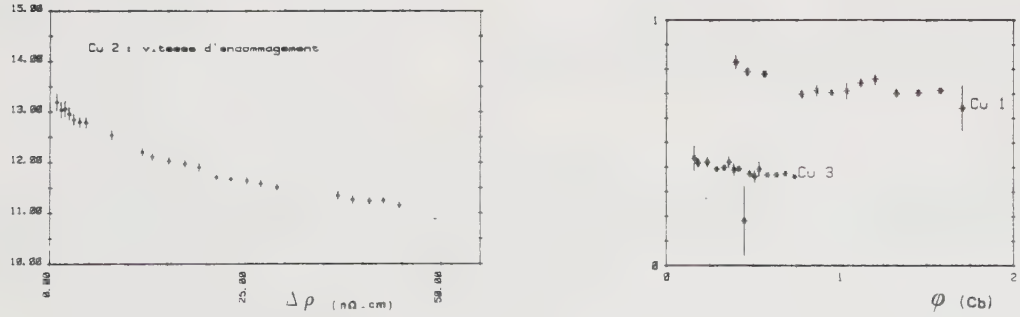


Figure 14 - Vitesse d'endommagement en unités arbitraires au cours de l'irradiation en fonction :

14.a - de la résistivité induite,
14.b - du flux (c'est alors la dérivée de la courbe de production).

près d'une paire précédente, plus précisément dans un volume v_o entourant cette paire, et aux recombinaisons sous irradiation (par les chocs sous-seuil), recombinaisons caractérisées par une section efficace σ_r.

On écrit la dérivée / 20 / :

$$\frac{dc}{d\phi} = \sigma_d (1 - v_o c)^2 - \sigma_r c.$$

Le premier terme, dû aux recombinaisons spontanées, signifie que l'on crée des ensembles de défauts suffisamment proches les uns des autres pour interagir.

Il représente au maximum dans notre cas, pour $c = 2.10^{-4}$ et $v_o = 125$ volume atomiques, 5 % de diminution de la vitesse de production.

Nous restons donc bien dans le domaine des faibles concentrations de défauts indépendants.

II.3.3 - Les recuits isochrones (résistivité)

Les courbes de recuit de la résistance pour les trois échantillons, normalisées à l'endommagement maximum (figure 15 : $\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_{max}}$ en fonction de la température T) sont particulièrement simples et présentent :

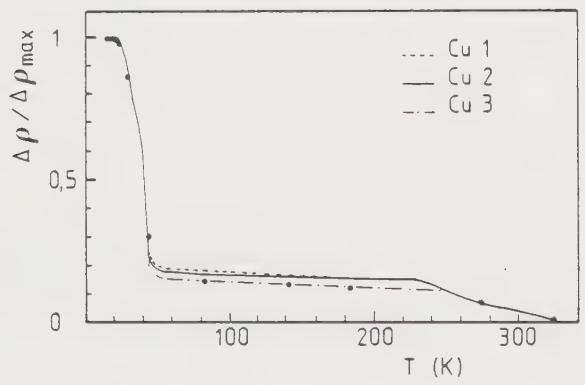


Figure 15 - Recuit isochrone des trois échantillons. Par souci de clarté, seuls les points expérimentaux de Cu 3 y figurent.

- un stade I très important (environ 81 % du total) divisé en sous-stades bien visibles (figure 16 ; le sous-stade I_A situé en-dessous de la température d'irradiation de Cu 1 et Cu 2 est donc absent) ,
- un stade II quasi-inexistant (4 % au total) ,
- et un stade III représentant 15 % du total, à l'issue duquel il ne reste pratiquement plus de résistivité induite par irradiation (5 °/₀₀ à 320 K).

Ces courbes sans stade II sont caractéristiques, dans le cuivre, d'irradiations à faible dose et faible énergie (voir par exemple W. SCHILLING et al. / 21 /).

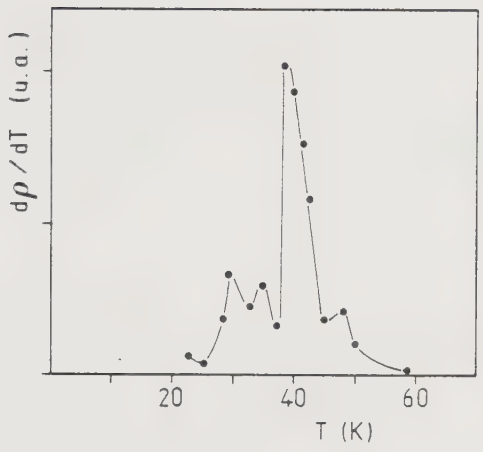


Figure 16 - Courbe dérivée de la courbe de recuit (figure 15) au stade I (expériences Cu 1 et Cu 2).

II.3.4 - Conclusion

Nous avons cherché à caractériser les défauts présents dans nos échantillons par l'étude des conditions d'irradiation (énergie, concentration), des courbes de production et de recuits isochrones de la résistivité. Les conclusions convergent:

> Nous avons créé dans les échantillons de cuivre irradiés principalement des paires lacune-interstitiel (en nombre moyen 1,4 par primaire), indépendantes les unes des autres, et très peu de défauts complexes.

II.4 - IRRADIATIONS AUX ÉLECTRONS : L'ÉLASTORÉSISTIVITÉ (E.R.) (voir / 57 /)

II.4.1 - Méthode de mesure

La méthode expérimentale est décrite au début du Chapitre II. Nous étudierons successivement les courbes de production de l'élastorésistivité (qui donnent l'effet global de la paire de Frenkel), puis les courbes de recuit, pour tenter de séparer l'effet des différents défauts.

Cependant, les expériences aux électrons diffèrent de celles aux neutrons par un point qui les rend plus délicates à réaliser.

Sous neutrons, en effet, l'ensemble du fil soumis à la traction (soit une longueur de 40 mm environ) est irradié, et sa limite d'élasticité est très

augmentée dès le début de l'irradiation (ce qui accroît le domaine de mesure et donc la précision).

Pour les irradiations aux électrons, au contraire, seule une longueur maximale de 12 mm peut être irradiée (de façon à limiter la diffusion des électrons dans la masse de la queue du cryostat et donc les échauffements locaux). De plus, pour la même raison, les mors de la machine de traction ne doivent pas se trouver dans le faisceau, et donc une partie seulement du fil est irradiée (figure 17).

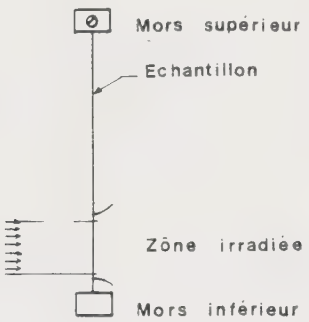


Figure 17

La limite d'élasticité de l'ensemble du fil (environ 60 mm) reste donc celle du fil initial. Cela constitue déjà un handicap pour les échantillons bruts. Mais cela compromet la possibilité de faire des mesures dans un échantillon initialement recuit pour lequel il est difficile de trouver un domaine élastique ! Pour cette raison l'échantillon recuit Cu 3 a été pré-irradié à température ordinaire aux neutrons sur toute sa longueur (*).

D'autre part, les prises de potentiel sont placées hors du flux mais près de la zone irradiée (de façon à mesurer principalement l'effet des défauts !).

L'échantillon proprement dit ne mesure alors que 15 mm environ : sa résistance est donc 3 ou 4 fois plus faible que pour les expériences aux neutrons, et la précision des mesures est réduite d'autant (de plus, sur les 15 mm, seuls les 12 mm irradiés voient leur résistivité multipliée par 10 ou 20 au cours de l'irradiation).

Enfin, le dépouillement en est compliqué car :

- la résistance mesurée est celle d'un échantillon irradié sur une certaine portion seulement ,
- le module de Young, modifié dans la zone irradiée n'est plus le même sur toute la longueur.

L'influence de ces deux effets sur le dépouillement est détaillée en Annexe IV.

II.4.2 - La production de l'E.R.

La figure 18 montre la production de l'E.R. au cours de l'irradiation, comparée à celle des neutrons (en tirets).

(*) Les déformations élastiques maximales atteintes sont d'environ 5.10^{-4} pour les échantillons bruts ainsi que pour l'échantillon recuit pré-irradié.

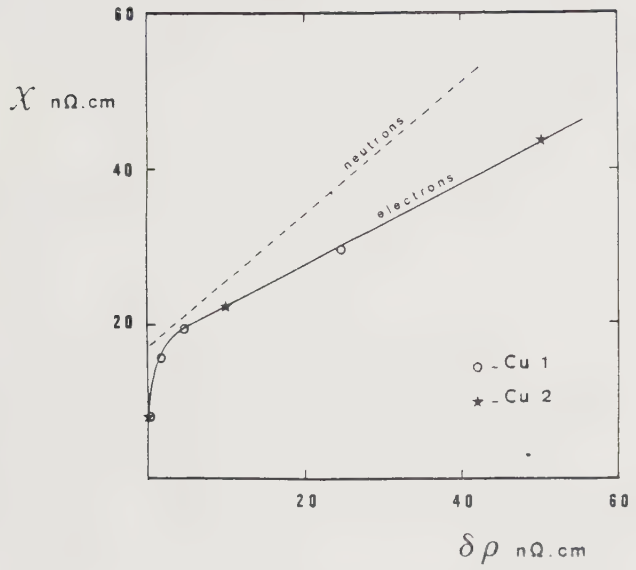


Figure 18 - Augmentation de l'élastorésistivité en fonction de la concentration de défauts d'irradiation (repérée par l'accroissement de résistivité $\Delta\rho$ pour les deux échantillons bruts. La pente obtenue par VON STEBUT sur le même type d'échantillons irradiés aux neutrons est reportée en tirets.

Avant de tirer des conclusions de ces résultats, nous allons estimer l'effet du "défaut de module" sur ces courbes. En effet, nous ne pouvons pas mesurer précisément le module au cours des expériences (voir Annexe IV). Or celui-ci varie fortement en début d'irradiation (figure 19 obtenue par VON STEBUT au cours d'irradiations aux neutrons). Le module des échantillons bruts tombe d'environ $\frac{\delta E}{E} \cong -20\ \%$, puis remonte vers - 7 % pour un endommagement d'environ 1 nΩcm. Il varie ensuite linéairement et faiblement. L'influence du module est donc forte dans le tout début de notre courbe (les valeurs sont alors nettement surestimées) puis faible dans la suite. Sur la figure 20 on corrige la courbe de production à

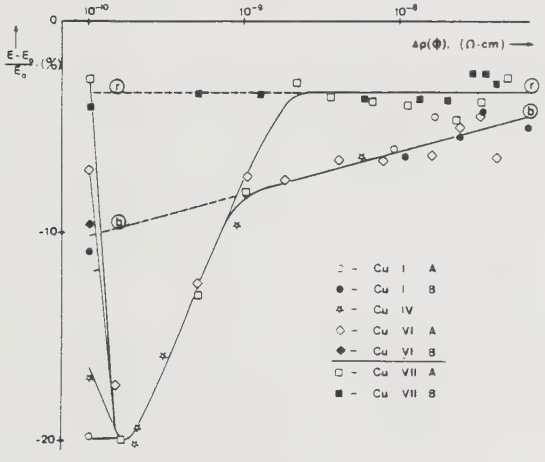


Figure 19 - Variation relative du module de Young des échantillons au début de l'irradiation en fonction de la résistivité induite (d'après J. VON STEBUT / 11 /).

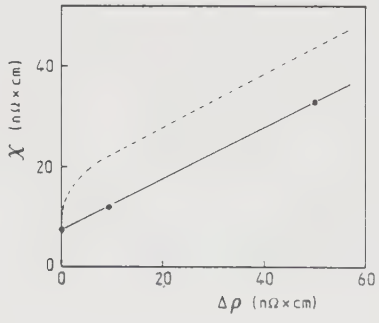


Figure 20 - Courbe de production corrigée de l'effet de module.

partir des effets de module mesurés par VON STEBUT. Comme les résultats sont obtenu pour une irradiation aux neutrons, cette correction n'est que grossière. Elle montre toutefois que l'allure de la courbe et sa pente ne sont que peu modifiées.

Trois points principaux ressortent :

1. La courbe de production est bien linéaire, confirmant la loi de Matthiessen "dérivée" trouvée par VON STEBUT et DELSARTE.

On peut écrire (avec les mêmes notations qu'au § II.2.2) :

$$\rho = \rho_o + C_{PF}\, \rho_{PF} \qquad \text{loi de Matthiessen}$$

$$\chi = \chi_o + C_{PF}\, \chi_{PF} \qquad \text{loi "dérivée"}$$

et définir ainsi l'élastorésistivité spécifique moyenne (E.R.S.) de la paire de Frenkel :

$$\chi_{PF} = \frac{\delta \rho_{PF}}{\varepsilon}$$

2. Il existe, de même qu'aux neutrons, un petit domaine non linéaire, que VON STEBUT attribue à l'épinglage des dislocations (en effet, il ne l'observe plus sur un échantillon irradié puis recuit vers 300 K, où les dislocations doivent donc être épinglées).

Comme il est précisé plus haut, ce domaine est aussi celui des forts défauts de module où notre courbe est entachée d'une erreur supplémentaire.

3. Et surtout, la pente de la droite $\Delta\chi = f(\Delta\rho)$, qui vaut :

$$\frac{\Delta\chi}{\Delta\rho} = \frac{\chi_{PF}}{\rho_{PF}} = k_{PF} \cong 0{,}5$$

est nettement inférieure à la valeur attendue d'après les expériences aux neutrons, soit 3 (voir § II.2.4).

Comme les électrons créent dans l'échantillon des paires de Frenkel beaucoup plus isolées que les défauts induits par les neutrons (voir par exemple / 20 /), ce résultat est incompatible avec un modèle où l'interstitiel a une E.R.S. $\chi_I \cong 3\, \rho_{PF}$ et la lacune une E.R.S. χ_L nulle, étant admis que pour la majorité des paires créées :

$$\chi_{PF} \cong \chi_I + \chi_L \cdot$$

Les courbes de recuit de l'E.R. doivent donner les informations sur les E.R.S. de l'interstitiel et de la lacune séparément.

II.4.3 - La restauration de l'élastorésistivité

Les courbes de recuit sont portées en figure 21 pour les échantillons bruts Cu 1 et Cu 2, et en figure 22 pour l'échantillon recuit Cu 3. Comme pour

les neutrons, elles représentent l'élastorésistivité induite restant après recuit à la température T, en fonction de cette température.

Elles sont normalisées à l'accroissement brut d'élastorésistivité :

$$\Delta\chi_{max} = \chi(\phi_{max}) - \chi(o)$$

soit pour ces courbes :

$$\frac{\Delta\chi_{(T)}}{\Delta\chi_{max}} = (\chi(T) - \chi(o)) / (\chi(\phi_{max}) - \chi(o))$$

En fait dans la mesure où la partie non linéaire de la courbe de production est attribuée à un phénomène d'épinglage de dislocations, qui resteront épinglées jusqu'à la fin de l'expérience, il est plus logique de s'intéresser au recuit de l'accroissement linéaire de l'élastorésistivité, comme l'a fait VON STEBUT.

Nous avons donc tracé aussi la restauration de l'élastorésistivité sous la forme :

$$(\chi(T) - \chi_o) / (\chi_{max} - \chi_o)$$

où χ_o est l'élastorésistivité d'un échantillon dont toutes les dislocations seraient épinglées. Sur la courbe de production, χ_o est alors l'intersection de la droite de production avec la droite $\Delta\rho = o$ (voir figure 23).

Le début de la courbe étant un peu faussé par le défaut de module (les valeurs de χ sont surestimées, comme on l'a vu au § II.4.2), nous avons choisi la valeur obtenue par VON STEBUT $\chi_o = 12,5$ nΩcm.

Nos échantillons sont identiques aux siens et ont la même élastorésistivité avant irradiation ; il est donc justifié de leur attribuer la même élastorésistivité lorsque les dislocations sont épinglées.

Ces courbes corrigées sont portées sur la figure 23 pour Cu 1 et Cu 2. Pour Cu 3, les dislocations sont épinglées par la pré-irradiation et la correction n'est pas nécessaire. L'allure des courbes n'est pas modifiée mais l'erreur systématique est accrue (du fait que $\chi_{max} - \chi_o < \chi_{max} - \chi(o)$).

Enfin, avant de discuter de ces résultats nous allons examiner, comme pour la courbe de production, l'influence du module. Nous disposons pour cela des mesures de module de Young de VON STEBUT au cours de ses recuits isochrones (figure 25). Pour l'échantillon brut Cu VI A, le module décroît de 20 K à 60 K ($\frac{\Delta E}{E}$ passe de - 6,5 % à - 9 %) puis augmente jusqu'à 200 K ($\frac{\Delta E}{E}$ de - 9 % à 0 %) et diminue encore entre 200 K et 300 K (jusque vers - 9 %).

Cet effet devrait donc être faible puisque les variations de module sont de toutes façons inférieures à 9 %. Il va dans le sens d'une accentuation de la chute de l'élastorésistivité entre 20 K et 60 K, et il est insuffisant pour expliquer la remontée de l'élastorésistivité entre 200 K et 300 K (en effet, pour Cu 2

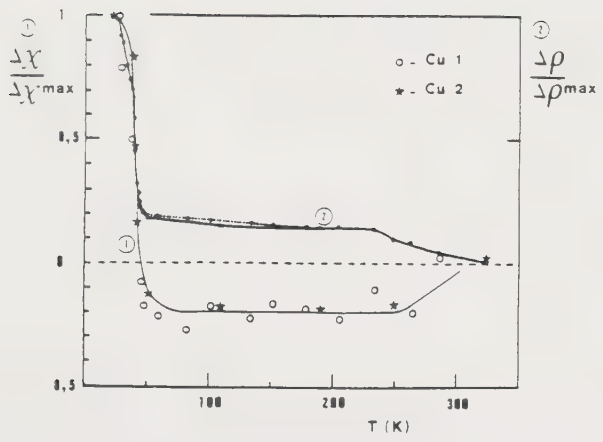


Figure 21 - Evolution au cours des recuits isochrones :

1. de l'élastorésistivité induite,
2. de la résistivité induite,

pour les deux échantillons bruts.

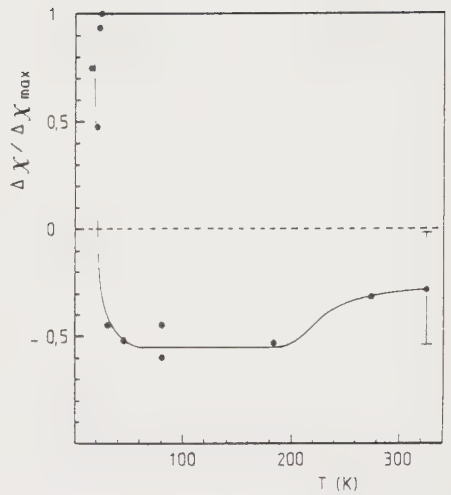


Figure 22 - Evolution au cours de recuits isochrones de l'élastorésistivité induite $\Delta\chi$ normalisée à sa valeur après irradiation $\Delta\chi_{max}$. Echantillon recuit Cu 3.

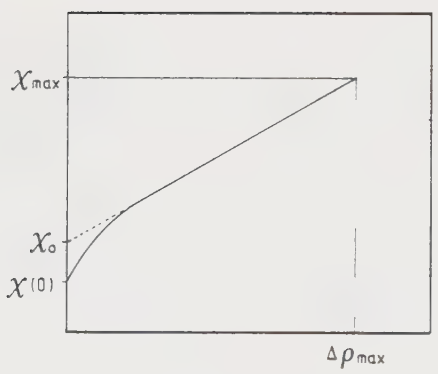


Figure 23 - Définition du χ_o.

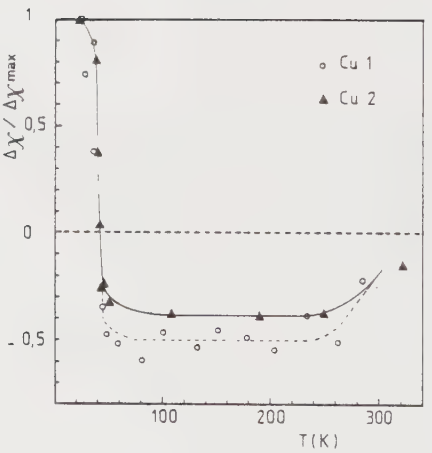


Figure 24 - Courbes de recuit isochrone de l'élastorésistivité utilisant le χ_o défini par la figure 23 :

en ordonnée $(\chi-\chi_o) / (\chi_{max}-\chi_o)$.

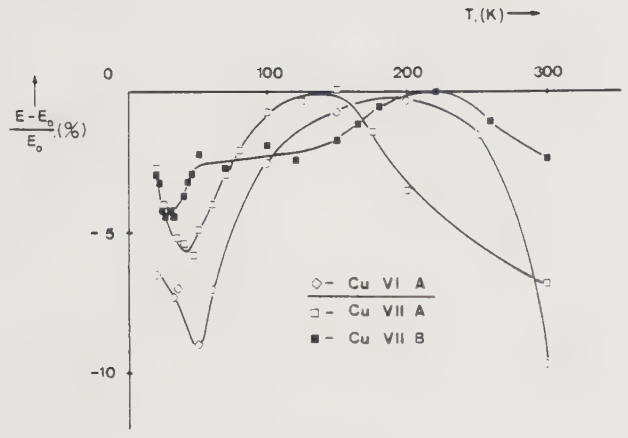


Figure 25 - Evolution du module de Young au cours de recuits isochrones suivant une irradiation aux neutrons (d'après J. VON STEBUT / 11 /).

par exemple un variation de module de 9 % diminuerait $\frac{\Delta\chi}{\Delta\chi_{max}}$ (320 K) de 0,05). Ces corrections sont assez grossières puisque nous appliquons à une expérience aux électrons des résultats obtenus aux neutrons. Elles doivent cependant donner le bon ordre de grandeur car des fluctuations plus importantes du module deviendraient visibles dans nos expériences.

Les modifications apportées par les défauts de module ne changent donc pas l'allure des courbes mais ont seulement des effets quantitatifs faibles.

Comme pour la restauration de la résistivité (figure 15 du § II.3.3), nos courbes de recuit ont une allure simple et montrent :

1. un premier stade de guérison très important de l'E.R. correspondant au stade I de la résisitivité,
2. une élastorésistivité restant constante à une valeur inférieure à sa valeur initiale (avant irradiation) entre 50 K et 240 K, soit au cours du stade II (l'élastorésistivité globale des défauts présents est alors négative) ,
3. un deuxième stade de guérison de l'élastorésistivité entre 240 K et 320 K, correspondant au stade III de la résistivité ,
4. à l'issue du stade III une élastorésistivité presque revenue à sa valeur initiale, comme la résistivité.

Les courbes ont la même allure pour les échantillons bruts et l'échantillon recuit. L'influence des dislocations est donc faible.

Un calcul d'erreurs figure en Annexe II. On en retiendra que les erreurs systématiques (d'étalonnage ou autres) y ont une part importante, surtout pour Cu 2 où les mesures ont une bonne précision du fait de la "forte" concentration de défauts, et de l'amélioration de la régulation de température.

La précision des mesures n'est cependant pas suffisante pour diviser le stade I en sous-stades comme pour la résistivité.

II.4.4 - Conclusion

Nous retrouvons, comme VON STEBUT :

- une E.R. croissant linéairement avec la dose,
- une chute très importante de l'E.R. au stade I,
- une E.R. négative au cours du stade II,
- probablement plus d'E.R. induite après le stade III (au-delà de 300 K).

Par contre, nos résultats diffèrent sur plusieurs points :

- l'E.R.S. de la paire de Frenkel, pente de la courbe de production, que nous trouvons égal à 0,5 ρ_{PF}, très inférieure à celle obtenue par VON STEBUT.

- la température de la guérison totale de l'élastorésisitivité. A partir de 200 à 220 K, dans les expériences de VON STEBUT, l'élastorésistivité est totalement restaurée et rien ne se passe au cours du stade III, alors que dans notre cas il reste jusqu'à 240 K une élastorésistivité négative importante qui semble se guérir au cours du stade III.

II.5 - Discussion

L'explication la plus simple des contradictions (apparentes) que nous venons d'énumérer, et l'hypothèse fondamentale de cette discussion est que l'élastorésistivité est très sensible à l'arrangement des défauts (isolés, en petits amas, en zones lacunaires, etc...).

VON STEBUT l'avait d'ailleurs remarqué en constatant que la chute d'élastorésistivité au cours du stade I est différente suivant les sous-stades, donc suivant la configuration lacune-interstitiel / 13 /.

Nous supposons alors que, par exemple, la lacune, la bi- ou tri-lacune, la zone lacunaire, ont des E.R.S. caractéristiques, différentes de une fois, deux fois ... l'E.R.S. d'une lacune. L'E.R. globale mesurée au cours de l'irradiation est donc une moyenne, dépendant des proportions des différents types de défauts créés. Pour poursuivre l'interprétation des résultats, nous devons connaître le

mieux possible les défauts présents aux principaux stades de nos expériences, après irradiation aux neutrons ou aux électrons.

C'est l'objet des paragraphes II.5.1 et II.5.2.

Cela nous permettra en II.5.3 d'obtenir quelques données solides sur l'E.R.S. des défauts et en II.5.4 d'expliquer la différence des pentes des courbes de production (qui constitue la première "contradiction" de l'encadré de la page 33).

Mais nos conclusions sont incomplètes car l'arrangement des défauts (surtout créés aux neutrons) est imparfaitement connu. Aussi en II.5.5 nous exposerons un modèle permettant d'expliquer à la fois les expériences de VON STEBUT aux neutrons rapides et les résultats obtenus aux électrons. Ce modèle n'est sans doute pas unique et le fait qu'il rende compte des résultats ne prouve pas sa justesse. Il a du moins le mérite de montrer que les résultats pourtant divergents des neutrons rapides et des électrons ne sont pas incompatibles.

II.5.1 - Quels sont les défauts présents au cours des expériences aux électrons

i) après irradiation :

Nos échantillons contiennent principalement des paires de Frenkel isolées (voir § II.3.4)

ii) après le stade I :

Le stade I est bien connu pour correspondre à la guérison des paires proches et à la migration libre, ou corrélée, de l'interstitiel. Le sous-stade I_D de la migration corrélée est très largement dominant.

La diffusion Huang a permis à P. EHRHART / 22 / de suivre la formation des amas d'interstitiels au cours des recuits isochrones, en particulier pour un échantillon de cuivre irradié dans des conditions très semblables aux nôtres ($T = 5$ K, $\Delta\rho = 25$ nΩcm). Il obtient un nombre moyen d'interstitiels par amas de :

$n \cong 1{,}6$ après recuit à 40 K
et $n \cong 7$ après recuit à 60 K

Donc, pendant le stade I :

- jusqu'au stade I_D compris, l'interstitiel retombe dans sa lacune ou beaucoup plus rarement peut former des amas (puisque $n \cong 1{,}6$ après recuit à 40 K),
- au stade I_E, de faible amplitude, l'interstitiel peut :
  - . tomber dans une lacune,
  - . former un amas avec un ou plusieurs interstitiels (puisqu'à la fin du stade I on a $n \cong 7$),
  - . se piéger sur une dislocation. Mais compte-tenu des concentrations en dislocations, la probabilité de cet événement est faible, surtout dans l'échantillon

recuit. Cet effet donnerait de plus une différence sensible entre les résultats des échantillons bruts et de l'échantillon recuit,

. se piéger sur une impureté. Compte-tenu de la concentration d'impuretés ($< 10^{-5}$) nettement plus faible que celle des défauts ($\cong 10^{-4}$), ce processus est peu probable. De plus, il donnerait lieu à un recuit au cours du stade II, que nous n'observons pas.

A la fin du stade I, il reste donc principalement :

- des lacunes en excédent,
- des amas d'interstitiels n ≅ 7,
- éventuellement, des interstitiels dissociés (modèle à deux interstitiels).

Au cours du stade II :

Les expériences de EHRHART / 22 /, rappelées plus haut, montrent que le nombre d'atomes par amas reste constant au cours du stade II jusque vers 100 K (n ≅ 7), et augmente ensuite. Après recuit à 200 K, EHRHART observe des boucles d'une centaine d'interstitiels (mais pour des raisons de sensibilité, les échantillons sont plus fortement endommagés : $\Delta\rho \cong 200$ nΩcm). D'après nos résultats, ce passage de petits amas (n ≅ 7) à des boucles, n'a pratiquement pas d'influence sur la résistivité.

iii) après le stade III :

Quels que soient les processus mis en oeuvre, le résultat final est qu'il n'y a plus de défauts dans nos échantillons. Les points qui ressortent clairement de la littérature sont :

1 - que les lacunes disparaissent au cours de ce stade (C. et M. MINIER, R. ANDREANI par résonance quadrupolaire / 23 / , S. MANTL, W. TRIFTSHÄUSER par annihilation de positons / 24 /) ,

2 - que les amas interstitiels grossissent sous forme de boucles (voir par exemple P. EHRHART / 22 / cité plus haut) ,

3 - que le deuxième interstitiel du modèle à deux types disparaît.

Les amas interstitiels sont déjà des boucles d'une centaine d'atomes à 200 K d'après P. EHRHART. Ils correspondent donc à 100 lacunes isolées. La résistivité de la boucle est alors beaucoup plus faible que celle des lacunes correspondantes. En résistivité, seuls les événements 1 et 3 seront donc visibles.

La chute de résistivité au stade III correspond à la disparition des lacunes (et/ou éventuellement à la migration d'un deuxième interstitiel).

Il ne reste pratiquement plus de défauts après le stade III.

II.5.2 - Quels sont les défauts présents au cours des expériences aux neutrons rapides ?

* Après irradiation : les simulations sur ordinateur de VINEYARD / 25 / et BEELER / 26 / convergent pour décrire la cascade comme une "zone lacunaire" entourée d'interstitiels isolés ou en petits amas. Les expériences de microscopie à émission ionique de SEIDMAN / 27, 28 / confirment cette image.

* Après le stade I : les processus mis en oeuvre sont les mêmes que pour les électrons : les interstitiels isolés se sont recombinés avec une lacune ou mis en amas. Il reste donc des zones lacunaires et des amas interstitiels. D'après les expériences de diffusion diffuse de VON GUERARD / 29 / sur le cuivre, ces amas comporteraient environ 90 atomes après le stade I. Toutefois, ce résultat concerne des échantillons très endommagés (avec une concentration de "paires de Frenkel" d'environ 10^{-3}) et les interstitiels sont alors déjà sous forme d'amas d'environ 25 atomes à la fin de l'irradiation.

* Au cours du stade II : ce stade est beaucoup plus important qu'aux électrons (voir figure 10.a). D'après les expériences de VON GUERARD, la taille des amas augmente jusqu'à atteindre environ 300 atomes à température ordinaire. D'autre part, on peut supposer que les impuretés, qui ne sont pas plus nombreuses que dans les expériences aux électrons, ne jouent pas un rôle important dans ce stade.

* Au cours des stades III et IV : tous les auteurs sont d'accord pour dire que les lacunes disparaissent au cours de l'un de ces deux stades.

II.5.3 - Qu'en déduire pour l'E.R.S. des défauts ?

* Au cours de l'irradiation aux électrons, on crée des paires de Frenkel isolées. En admettant qu'il y a une seule élastorésistivité spécifique pour la paire de Frenkel (ce qui n'est pas tout à fait vrai, nous l'avons vu plus haut), on peut écrire :

$$\chi_{PF} \cong 0{,}5\ \rho_{PF}$$

où $\chi_{PF} = \chi_I + \chi_L$ est la somme des élastorésistivités spécifiques de la lacune et de l'interstitiel.

* Aux neutrons, après recuit vers 300 K, l'élastorésistivité induite par l'irradiation est complètement guérie. Or à cette température la présence d'amas (ou de boucles) est encore apparente en résistivité (d'après les expériences de VON STEBUT, figure 10.a, il reste environ 15 % de la résistivité induite). On en déduit que l'élastorésistivité spécifique de ces gros amas (ou boucles) est négligeable.

* Aux électrons, entre 60 K et 200 K, la taille des amas passe environ de 7 à 100 atomes sans que l'élastorésistivité varie. La contribution à l'élastorésistivité totale de ces petits amas est donc, elle aussi, négligeable (ceci peut être dû soit à une E.R.S. faible, soit à la faible concentration des amas).

* Dans tous les cas, la chute de résistivité du stade I est attribuée très majoritairement à la guérison des paires, mais aussi à la formation d'amas. Or la contribution de ces derniers à l'élastorésistivité est négligeable.

La chute de l'élastorésistivité au stade I est donc due à la guérison des paires, et son amplitude (plus élevée que pour la création) correspond au déséquilibre des populations d'interstitiels et de lacunes. En effet, le nombre d'interstitiels éliminés est plus important que celui des lacunes puisque plusieurs mécanismes ne font pas intervenir de lacunes. On en conclut donc, comme VON STEBUT, que l'interstitiel (du moins celui qui se recuit au stade I) a une élastorésistivité positive et forte.

* Au cours du stade II aux électrons, l'élastorésistivité reste constante et négative. On en conclut que l'un des défauts présents a une élastorésistivité négative (lacune ou éventuellement deuxième interstitiel).

* De plus, au stade III l'élastorésistivité augmente et revient pratiquement à sa valeur initiale, de même que la résistivité. Comme à la fin de ce stade il n'y a plus (ou presque) de défauts dans l'échantillon, cette montée de l'élastorésistivité n'est pas due à la création d'un défaut à l'E.R.S. positive mais à la disparition d'un défaut à élastorésistivité spécifique négative (ce peut être la lacune dans le modèle à un interstitiel, la lacune et/ou l'interstitiel dissocié dans le modèle à deux interstitiels). D'autre part, ce défaut a aussi une élastorésistivité spécifique forte puisque du même ordre que sa résistivité (voir la figure 21).

* Enfin, l'élastorésistivité spécifique de la paire de Frenkel : $\chi_{PF} = \chi_I + \chi_L$ est plus faible que l'élastorésistivité spécifique χ_I de l'interstitiel (laquelle est supérieure à χ_{PF} puisqu'au stade I la chute de l'élastorésistivité est plus rapide que celle de la résistivité). On en déduit donc (si l'on peut vraiment dissocier χ_{PF} en $\chi_I + \chi_L$) que la lacune a une élastorésistivité spécifique négative.

En résumé nous affirmons :

- que la paire de Frenkel a une E.R.S. :

$$\chi_{PF} \cong 0{,}5\ \chi_{PF} \ ,$$

- que les amas et les boucles d'interstitiels ont une élastorésistivité spécifique négligeable (au moins les gros amas) ,
- que l'interstitiel a une élastorésistivité spécifique forte et positive .

- qu'un défaut éliminé au stade III (lacune ou interstitiel dissocié) a une élastorésistivité spécifique forte et négative ,
- que si l'on peut considérer l'élastorésistivité spécifique de la paire de Frenkel comme la somme des élastorésistivités spécifiques de la lacune et de l'interstitiel, la lacune a une élastorésistivité spécifique négative.

II.5.4 - Différence des pentes des courbes de production

C'est la première contradiction entre les expériences aux neutrons et aux électrons : aux neutrons, on a $\Delta\chi \cong \Delta\rho$, alors qu'aux électrons $\Delta\chi \cong 0{,}5\ \Delta\rho$. (voir la figure 18).

Les conclusions précédentes permettent de lever cette contradiction si l'on admet que la lacune a une élastorésistivité spécifique négative.

En effet, aux électrons on crée des paires de Frenkel isolées et $\Delta\chi = C\ \chi_{PF} = C\ (\chi_I + \chi_L)$, les concentrations d'interstitiels et de lacunes isolées étant les mêmes $C_I = C_L = C$.

Aux neutrons la cascade de défauts est formée d'une zone lacunaire entourée d'interstitiels libres ou en petits amas. La concentration C_L de lacunes isolées est donc faible, et plus faible que celle C_I des interstitiels isolés. En admettant que la contribution de la zone lacunaire est peu importante, l'élastorésistivité globale mesurée $C_I\ \chi_I + C_L\ \chi_L$ (où $C_L < C_I \cong C$) est plus élevée qu'aux électrons (car χ_I est positif et χ_L négatif).

Il est donc normal que la pente des courbes de production d'élastorésistivité soit plus élevée aux neutrons qu'aux électrons.

II.5.5 - Modèle

Pour obtenir des données plus quantitatives (encore qu'incertaines) et expliquer les résultats différents aux électrons et aux neutrons, nous devons poser quelques hypothèses :

- nous nous plaçons, pour simplifier, dans le modèle à un interstitiel,
- nous supposons que les élastorésistivités spécifiques de la lacune et de l'interstitiel dans la paire de Frenkel sont indépendantes :

$$\chi_{PF} = \chi_I + \chi_L$$

- nous admettons aussi qu'il en est de même pour la résistivité $\rho_{PF} = \rho_I + \rho_L$ et de même pour un amas $\rho_{nI} = n\rho_I$, $\rho_{nL} = n\rho_L$,
- nous éliminons aussi les amas et les boucles. Comme nous l'avons vu plus haut, leur élastorésistivité spécifique doit être négligeable (au moins pour les gros amas), et quand bien même elle serait de l'ordre de leur résistivité, leur concentration est tellement faible qu'ils n'interviendraient pas.

Aux électrons, en appelant C la concentration de défauts créés, au cours de la production nous écrivons :

$$\frac{d\chi}{d\rho} = \frac{C\,\chi_I + C\,\chi_L}{C\,\rho_I + C\,\rho_L} \cong (0,52 \pm 0,05)$$

soit $$\chi_I + \chi_L \cong (0,52 \pm 0,05)\ \rho_{PF} \qquad (1)$$

Pendant la guérison du stade I, 83 % de la résistivité induite disparaît : on admet que la formation de di-interstitiels n'a pas d'effet sur la résistivité et donc que 83 % des paires de Frenkel se sont recuites. Les hypothèses sont résumées ci-dessous :

Mécanismes principaux	Proportion	Effet sur χ par interstitiel	Effet sur ρ
$I + L \rightarrow 0$	0,83	$-\chi_I - \chi_L$	$-\rho_I - \rho_L$
$I + I \rightarrow 2I$	0,17	$-\chi_I$	0

d'où $$\frac{d\chi}{d\rho} = \frac{C\,\chi_I + 0,83\,C\,\chi_L}{0,83\,C\,(\rho_I + \rho_L)}$$

soit $$1,20\,\chi_I + \chi_L = \left(\frac{d\chi}{d\rho}\right)\rho_{PF}$$

Or les expériences Cu 1 et Cu 2, peu précises, permettent d'écrire :

$$\frac{d\chi}{d\rho} \cong (1,2 \pm 0,3)\ \rho_{PF}$$

soit $$1,20\,\chi_I + \chi_L \cong (1,2 \pm 0,3)\ \rho_{PF} \qquad (2)$$

On tire des équations (1) et (2) (et donc des seules expériences aux électrons) :

$$\chi_I \cong (3,4 \pm 1,7)\ \rho_{PF}$$

$$\chi_L \cong (-2,9 \pm 1,7)\ \rho_{PF}$$

Venons-en aux expériences aux neutrons. Nous pouvons expliquer les résultats en faisant les hypothèses suivantes (un peu rapides mais justifiées au premier ordre) :

- il n'y a pas de monolacunes : l'ensemble des lacunes est sous forme de zones lacunaires ou de petits amas,

- sur la concentration totale C d'interstitiels créés, seule une partie α C est libre.

Dans ces conditions, l'équation de production s'écrit :

$$\frac{d\chi}{d\rho} = \frac{\alpha\ C\ \chi_I}{C\ \rho_{PF}} \cong 1,4 \qquad \text{(voir VON STEBUT / 11 /).}$$

De même pour la guérison du stade I, qui a une amplitude en résistivité de 40 % on peut écrire :

$$\frac{d\chi}{d\rho} = \frac{\alpha\ C\ \chi_I}{0,4\ C\ \rho_{PF}} \cong 3,2 \qquad \text{(voir VON STEBUT / 13 /).}$$

En effet, d'après les hypothèses précédentes, les mécanismes peuvent se résumer comme suit :

Mécanisme	Proportion	Effet sur χ par interstitiel	Effet sur ρ
I + L → 0	0,4	$-\chi_I$	$-\rho_I - \rho_L$
I + I → di-I	α - 0,4	$-\chi_I$	0

Les deux équations, de production et de recuit, s'écrivent :

$$\alpha\ \chi_I \cong 1,4\ \rho_{PF} \quad \text{(production)}$$
$$\alpha\ \chi_I \cong 1,28\ \rho_{PF} \quad \text{(recuit)}$$

elles sont donc compatibles entre elles, compte tenu de la précision des mesures, et cohérentes avec les expériences aux électrons pour $\alpha \cong 0,4$ c'est-à-dire si un peu moins d'un interstitiel sur deux, créés par les neutrons rapides, est libre.

En conclusion, par ce modèle simple nous avons pu montrer que les résultats très différents des expériences aux électrons et aux neutrons, tant au cours de la production que des recuits, sont loin d'être incompatibles.

II.5.6 - Conclusion

En conclusion, nous avons montré que l'élastorésistivité est une mesure très sensible à la configuration des défauts. De ce fait, elle est très intéressante car elle doit permettre de mieux définir les défauts présents dans un échantillon (par exemple nous pouvons conclure dans les expériences aux neutrons, puisqu'il n'y a plus d'élastorésistivité aux stades III et IV, qu'il n'y a probablement pas de monolacunes libres, et donc qu'il n'y en avait sans doute pas dès la production).

Nous avons conclu principalement que :

- la paire de Frenkel a une élastorésistivité spécifique : $\chi_{PF} \cong 0{,}5\ \rho_{PF}$.
- les amas et boucles (lacunaires ou interstitiels) ont une E.R.S. négligeable.
- l'interstitiel a une élastorésistivité spécifique forte et positive ($\chi_I \cong (3{,}4 \pm 1{,}7)\ \rho_{PF}$ dans un modèle simple).
- un défaut éliminé au stade III a une élastorésistivité spécifique négative.
- la lacune a une E.R.S. négative ($\chi_L = (-\ 2{,}9 \pm 1{,}7)\ \rho_{PF}$ dans un modèle à un interstitiel).

Ce dernier point pourrait être confirmé par des expériences de trempe. Elles sont malheureusement difficiles à réaliser car il faut introduire une concentration importante de défauts pour faire des mesures d'élastorésistivité.

On remarquera enfin que trouver une élastorésistivité négative pour la lacune ne constitue pas une anomalie puisque la lacune est un cas particulier d'impureté de substitution et que DELSARTE a trouvé pour toutes les impuretés de substitution étudiées une E.R.S. négative et de l'ordre de $-\ \rho_D$ (où ρ_D est la résistivité spécifique de l'impureté).

CHAPITRE III

IRRADIATIONS ET RECUITS DU MOLYBDENE

III.1 - DÉFAUTS D'IRRADIATION DANS LE MOLYBDÈNE - BIBLIOGRAPHIE

III.1.1 - Défauts créés par irradiation aux électrons
III.1.2 - Effets de l'énergie d'irradiation et de l'orientation
III.1.3 - Mesures de cinétique
III.1.4 - Mesures sur des échantillons de très haute pureté
III.1.5 - Mesures diverses
III.1.6 - Conclusions

III.2 - CONDITIONS EXPÉRIMENTALES

III.2.1 - Conditions d'irradiation et de recuit
III.2.2 - Mesures de la résistance, du flux et de la température
III.2.3 - Echantillons et montage expérimental

III.3 - PRODUCTION DES DÉFAUTS

III.3.1 - Défauts produits
III.3.2 - Courbes de production de résistivité
III.3.3 - Influence d'une contrainte uniaxiale

III.4 - RECUIT DES DÉFAUTS

III.4.1 - Cinétique des recuits
III.4.2 - Energies d'activation
III.4.2.1 - Recuits linéaires
III.4.2.2 - Recuits non linéaires
III.4.3 - Influence d'une contrainte uniaxiale sur la vitesse de recuit

Les résultats présentés dans la suite (Chapitres III, IV et V) concernent les effets d'une déformation élastique anisotrope sur des défauts créés par irradiation aux électrons à basse température dans le molybdène. Pour cela les échantillons sont montés dans la micromachine de traction décrite au paragraphe I.2.1 et donc la déformation est créée par une traction uniaxiale parallèle au courant électrique de mesure de la résistance des échantillons.

Les défauts étudiés sont ceux qui disparaissent au cours du stade I des recuits isochrones. Avant d'examiner l'effet proprement dit de la contrainte sur ces défauts (Chapitres IV et V) nous commencerons donc par exposer au Chapitre III :

- un résumé bibliographique des nombreuses expériences et interprétations concernant les défauts dans le molybdène et plus particulièrement le stade I,
- les conditions expérimentales de nos mesures,
- les résultats concernant la production de nos défauts,
- et les résultats des recuits de nos échantillons.

III.1 - Défauts d'irradiation dans le molybdène - Bibliographie

En premier lieu (§ III.1.1) nous rappellerons les résultats connus sur les défauts créés par irradiation aux électrons dans le molybdène (seuil, direction des défauts, ...). Puis (§ III.1.2, III.1.3, III.1.4, III.1.5) nous concentrerons notre attention sur les phénomènes de recuit du stade I. Nous désignons ici par "stade I" l'ensemble des étapes de guérison se produisant avant 60 K environ (les courbes de recuit de résistivité étant généralement "plates" entre 60 K et 100 K). Les mesures physiques sur les défauts de ce stade sont nombreuses, ayant souvent pour objet la recherche de ce serpent de mer qu'est la migration libre de l'interstitiel dans le molybdène.

Nous citerons successivement :

- les résultats de M. BIGET, P. VAJDA, F. MAURY et P. LUCASSON qui sont une étude systématique (par résistivité) de l'influence de l'énergie d'irradiation et de l'orientation des échantillons sur le stade I ,
- les études cinétiques de AFMAN sur les différents sous-stades ,
- les mesures de résistivité de KUGLER sur des échantillons d'une pureté exceptionnelle ,

- et divers résultats (frottement interne, rôle des impuretés, etc...),

avant d'essayer de tirer des conclusions.

III.1.1 - Défauts créés par irradiation aux électrons

Par irradiation aux électrons, nous créons dans le molybdène des paires de Frenkel, lacune + interstitiel, dont le nombre maximum par primaire est donné par le critère de KINCHIN et PEASE / 19 / :

$$n = \frac{T_m}{2\,E_d}$$

où T_m est l'énergie maximale transmise au primaire et E_d l'énergie seuil de déplacement.

Les caractéristiques des défauts auxquelles nous nous intéressons sont :

- l'énergie seuil de déplacement,
- la configuration des défauts,
- leurs propriétés physiques.

- Energie seuil :

Ces résultats sont dus au groupe LUCASSON à Orsay. BIGET et al. / 30 / ont mesuré la vitesse d'augmentation de la résistivité en fonction de l'orientation cristallographique. La direction de plus facile déplacement est <100>. F. MAURY et al. / 31 / ont effectué une analyse de ces résultats à partir d'un modèle géométrique de la surface des énergies de seuil. Les paramètres du modèle (E_d < hkl >) sont ajustés pour permettre un bon accord avec l'expérience. Finalement l'analyse donne :

$$E_d\ \langle 100\rangle \cong (35\ ^{+1}_{-2})\ \text{eV}$$
$$E_d\ \langle 111\rangle \cong (45 \pm 3)\ \text{eV}$$
$$E_d\ \langle 110\rangle > 2\,E_d\ \langle 100\rangle$$

Pour les polycristaux, RIZK et al. / 32 / ont obtenu : $E_d \cong 35$ eV.

Notons que cette énergie minimale de 35 eV correspond à une énergie de 0,84 MeV pour les électrons.

- Configuration des défauts :

Les expériences convergent pour prouver que l'interstitiel dans le molybdène est un interstitiel dissocié (ou haltère) suivant <110>. On peut citer principalement les expériences de diffusion Huang de EHRHART / 33 /, et aussi celles de S. OKUDA / 34 / sur le frottement interne.

En ce qui concerne les positions relatives de la lacune et de l'haltère, nous disposons de simulations sur ordinateur par F. MAURY et al. / 35 /. F. MAURY a calculé, par une méthode de "lattice statics", des énergies de configuration de paires de Frenkel dirigées suivant <100> et <111>, et dont l'interstitiel est dissocié dans des directions <110> non équivalentes par rapport à celle de la paire. Par exemple, pour une paire créée dans la direction [100], l'interstitiel peut être dissocié suivant les quatre directions équivalentes [110], [1$\bar{1}$0], [101], [10$\bar{1}$] avec un angle de 45° ou suivant [011] et [01$\bar{1}$] avec un angle de 90°.

On observe surtout une forte anisotropie des énergies, particulièrement dans le cas des paires créées suivant <100> où la configuration perpendiculaire a la plus basse énergie, l'écart maximum obtenu étant de l'ordre de 100 meV / 35 /.

- Propriétés physiques des défauts :

Les données sont beaucoup moins nombreuses que dans le cas des matériaux cubiques à faces centrées.

La résistivité spécifique de la paire de Frenkel a été déduite par P. EHRHART / 33 / d'expériences de diffusion diffuse : $\rho_{PF} \cong (15 \pm 3).10^{-4}$ Ωcm/PF et par F. MAURY / 31 / des expériences de seuil de déplacement : $\rho_{PF} \cong (13 \pm 2).10^{-4}$ Ωcm/PF.

Par des simulations suivant une méthode de "lattice statics" P.N. KENNY et al. / 36 / ont obtenu pour l'énergie de formation d'un interstitiel $E_I^f \cong 8$ eV (et ce pour diverses configurations).

III.1.2 - Effets de l'énergie d'irradiation et de l'orientation (M. BIGET, A. et P. LUCASSON, F. MAURY, P. VAJDA)

Ce travail de l'équipe LUCASSON à Orsay, comprend deux parties :

i) une étude expérimentale systématique des courbes de recuit différentielles à deux énergies et pour quatre orientations par M. BIGET et al. / 30 / en 1973,

ii) un essai d'interprétation de ces résultats grâce à des déterminations de sections efficaces de déplacement par F. MAURY et al. / 31 / en 1974.

Les résultats de l'étude expérimentale sont résumés sur la figure 26 et dans les six premières colonnes du Tableau III. Les traits principaux en sont :

- une division du stade I en quatre sous-stades nommés I_1 (10-15 K), I_2 (20-30 K), I_3 (30-35 K) et I_4 (35-45 K). Les sous-stades I_1 et I_4 donnent des pics fins nettement détachés des autres. Les sous-stades I_2 et I_3 sont plus étalés, et I_2 semble être formé de deux parties I_{2a} (20-25 K) et I_{2b} (25-30 K) plus ou moins superposées.

- une forte dépendance de ces quatre sous-stades vis-à-vis de l'énergie des électrons et de l'orientation. Les deux énergies utilisées, 1,1 MeV et 1,7 MeV

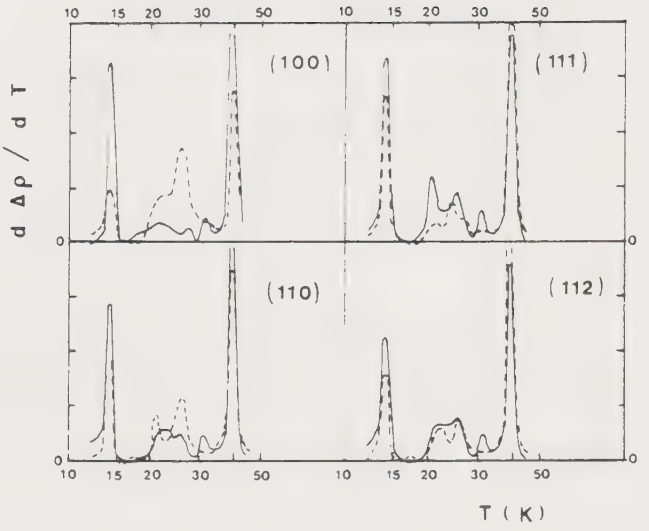


Figure 26 - Courbes dérivées de guérison de la résistivité au cours de recuits isochrones de monocristaux, pour quatre directions d'irradiation et deux énergies : 1,1 MeV (trait continu) et 1,7 MeV (tirets) (d'après M. BIGET et al. / 30 /).

correspondent respectivement à $T_m \cong 1,5\ E_d$ et $T_m \cong 3\ T_d$ (pour $E_d \cong 35$ eV / 27 /). L'une est donc très proche du seuil et l'autre est déjà une forte énergie. Les quatre orientations étudiées correspondent aux directions les plus denses.

A partir de l'analyse des énergies seuil de déplacement, exposée dans III.1.1, F. MAURY a alors calculé les contributions dues aux déplacements suivant <100> et <111> aux sections efficaces de déplacement totales, et a pu établir une correspondance avec les proportions des sous-stades $I_1 + I_4$ d'une part, et $I_2 + I_3$ d'autre part, comme on le voit sur les quatre dernières colonnes du Tableau III. Cette corrélation, vraiment excellente pour l'énergie d'irradiation proche du seuil, est moins bonne pour l'énergie forte, ce qui s'explique facilement par la plus grande complexité des mécanismes de création (chocs multiples).

Ceci conduirait à attribuer les sous-stades :

I_1 et I_4 à des déplacements <100>
I_2 et I_3 à des déplacements <111>

en appelant "déplacement" le vecteur lacune-interstitiel.

L'existence de sous-stades différents pour un même type de déplacement est alors attribuée aux différentes directions de dissociation possibles pour l'interstitiel. Cette hypothèse est confirmée par les calculs d'énergies de configuration de F. MAURY cités dans III.1.1 qui donnent même une anisotropie plus forte pour les déplacements <100>, ce qui correspondrait bien à la grande distance entre les stades I_1 et I_4.

TABLEAU III

Guérison (normalisée à 45 K) au cours des sous-stades I_1 à I_4 pour diverses énergies et directions d'irradiation et contribution des déplacements <100> et <111> à la section efficace totale dans la direction donnée, en % (d'après MAURY et al. / 31 /)

sample	E/MeV	1 I_1 10-15 K	2 I_2 20-30 K	3 I_3 30-33 K	4 I_4 35-45 K	5 $I_1 + I_4$	6 σ (100)	7 $I_2 + I_3$	8 σ (111)
100	1.1	18	10	5.5	65.5	83.5	86.8	15.5	13.2
	1.7	7.5	48.5	2	36.5	44	19.5	50.5	80.4
110	1.1	17.5	18.5	6	54.5	72	72.5	24.5	27.5
	1.7	9.5	32	2	53	62.5	55.3	34	44.4
112	1.1	17.5	25.5	7	49	66.5	69.3	32.5	30.7
	1.7	10.5	22	2	62	72.5	64.2	24	35.6
111	1.1	16.5	30.5	7.5	42.5	59	56.7	38	43.3
	1.7	12.5	18.5	2.5	63.5	76	87.9	21	12.1

III.1.3 - Mesures de cinétique de recuit (H.B. AFMAN, 1972 / 37 /)

H.B. AFMAN a irradié aux électrons, à des énergies différentes comprises entre 1,05 MeV et 1,85 MeV, des polycristaux de molybdène de rapports de résistivités ρ_{300}/ρ_4 compris entre 600 et 930.

Il a ensuite ensuite tracé et analysé des recuits isothermes pour tous les sous-stades du stade I (sauf I_1 et I_3).

J'ai résumé ses résultats dans le Tableau IV en reprenant la notation de BIGET pour les sous-stades.

AFMAN considère, d'après son étude, que tous les sous-stades peuvent être interprétés comme dans le cuivre (paires proches puis recombinaison corrélée) sauf I_4 pour lequel il propose, à titre d'exemple, un nouveau type de défaut.

TABLEAU IV

(d'après J.B. AFMAN / 37 /)

Sous-stade	Type de cinétique	$E_{activ.}$ meV	ν_o sec^{-1}	Interprétation
I_{2a}	Paires proches	66	$0,5.10^{13}$	Recombinaison de paires proches
I_{2b}	Recombinaison corrélée ?	76	$0,9.10^{12}$	Recombinaison corrélée
I_4 .	Paires proches ?	113	$1,8.10^{11}$	Nécessite un nouveau type de défauts

III.1.4 - Mesures de résistivité sur des échantillons de très haute pureté
(H. KUGLER, H. SCHULTZ)

KUGLER / 38 / a étudié les courbes différentielles de guérison de la résistivité au cours du stade I, pour des monocristaux de molybdène ; l'orientation des cristaux ainsi que l'énergie d'irradiation ont été soigneusement choisies d'après les mesures de BIGET (voir § III.1.2) de façon à minimiser le petit stade I_3. D'autre part, les échantillons utilisés sont d'excellente pureté ($\frac{R_{300}}{R_4}$ = 1 500 à 86 000, avec pour ce dernier une concentration en impuretés, tungstène compris, d'environ 1,3 p.p.m.).

KUGLER voit alors apparaître entre 37 K et 41 K un petit stade qui se déplace vers les basses températures lorsque la dose d'irradiation augmente, et présente les caractéristiques de la migration libre de l'interstitiel.

Ce stade se trouvant en-dessous du stade I_4 attribué à la recombinaison corrélée, KUGLER fait appel aux effets d'anisotropie mis en évidence par les calculs de F. MAURY pour supposer que certains interstitiels pourraient être "piégés" par leur lacune.

III.1.5 - Mesures diverses

D'autres types de mesures ont été appliqués aux défauts dans le molybdène nous citerons des mesures de frottement interne, d'effet de dopage, de recuit sous pression, et de création et recuit sous contrainte uniaxiale.

Les mesures de frottement interne de H. MIZUBAYASHI et S. OKUDA / 34 / et de R. PICHON et al. / 39 / concernent des défauts créés par des neutrons rapides.

H. MIZUBAYASHI et al. trouvent des pics de frottement qui se guérissent vers 28 K et vers 42 K et les attribuent respectivement à l'interstitiel libre et au di-interstitiel. Ils ont, d'autre part, mesuré l'effet de l'irradiation sur le module élastique et trouvent, par concentration unitaire de paire de Frenkel :

$$\Delta E \langle 100 \rangle / E \langle 100 \rangle \cong - 20$$

$$\text{et} \quad \Delta E \langle 111 \rangle / E \langle 111 \rangle \cong - 7$$

R. PICHON et al. obtiennent deux pics de frottement interne dont le défaut responsable disparaît au stade I_4. Ils en concluent que ce défaut est un interstitiel dissocié dont la migration libre aurait donc lieu au stade I_4. Le premier des pics, attribué à une réorientation sans migration de l'interstitiel, a une énergie de réorientation E ≅ 80 MeV et une fréquence $\nu_o = 10^{11}\ s^{-1}$.

G. ANTESBERGER et al. / 40 / ont étudié l'influence d'un dopage en lacunes de l'échantillon sur les sous-stades du stade I. En augmentant la densité de lacunes, on doit favoriser la guérison de l'interstitiel libre sans toucher aux stades de paires proches, et ainsi minimiser l'influence des impuretés. Avec ce critère, le stade I_4 semble correspondre à la migration à longue distance. Cepen-

dant le stade I_3 (30-35 K) augmente lui aussi avec le dopage dans le cas d'irradiation à forte énergie, ce que les auteurs interprètent en disant qu'au voisinage d'une lacune, le seuil de déplacement pourrait être diminué, autorisant ainsi la création de paires proches différentes.

KULCINSKI et al. / 41 / ont étudié l'influence de la pression hydrostatique sur les recuits isochrones de défauts créés par des neutrons rapides dans le molybdène et ont trouvé un décalage important vers les basses températures des stades III et IV sous pression (respectivement 60 K et 300 K sous 20 kbar).

PONSOYE / 6 / a regardé l'influence d'une contrainte, uniaxiale cette fois, sur la création de défauts par des fragments de fission à 20 K, et leur recuit isochrone, mais dans le tungstène. La contrainte n'a aucune influence sur la production des défauts (ce que J.L. POUCHOU et al. / 42 / confirmeront pour du molybdène irradié dans les mêmes conditions). Mais, de même que la pression hydrostatique, elle a pour effet de décaler les stades de recuit (y compris la fin du stade I) vers les basses températures.

III.1.6 - Conclusions

Cette bibliographie ne vise pas à être exhaustive, en particulier sur la question de la migration de l'interstitiel libre pour laquelle les conclusions des auteurs sont fréquemment en contradiction. Nous résumons ici ce sur quoi il y a accord à peu près général :

- les interstitiels sont dissociés suivant <110>,
- la résistivité de la paire de Frenkel est $\rho \cong 13\ \mu\ cm/\%$
- l'énergie du seuil minimal de déplacement est $E_d \cong 35$ eV,
- le stade I peut être décomposé en quatre sous-stades principaux I_1 (10-15 K), I_2 (20-30 K), I_3 (30-33 K) et I_4 (35-45 K), fortement dépendants de l'énergie d'irradiation et de l'orientation des échantillons,
- les trois premiers sous-stades au moins correspondent à la recombinaison de paires proches ou à une recombinaison corrélée.

III.2 - CONDITIONS EXPÉRIMENTALES

III.2.1 - Conditions d'irradiation et de recuit

Les irradiations et les recuits ont eu lieu dans le dispositif cryogénique VINKAC placé en face de l'accélérateur VAN DE GRAAFF de notre laboratoire.

Le dispositif est décrit en Annexe II.

L'échantillon baigne dans de l'hydrogène liquide, dont la température est régulée très finement (à $\pm$ 0,01 K) à partir de la pression au-dessus du bain, grâce à une régulation P.I.D.

La résistance de l'échantillon est mesurée au cours de l'irradiation. Sa valeur et sa stabilité garantissent que l'échauffement dû à l'irradiation est bien homogène dans l'échantillon et contrôlé (lorsqu'on arrête l'irradiation, le décalage obtenu en résistance permet de mesurer directement l'échauffement, la courbe résistance-température du molybdène étant connue).

Le faisceau d'électrons est calibré par un diaphragme de 4 x 12 mm^2. Des balayages du faisceau, dans les deux dimensions, permettent d'assurer une bonne homogénéité du courant sur toute cette surface.

La position du faisceau et son homogénéité sont d'ailleurs vérifiées par l'intermédiaire d'un papier "ozalid". Ce papier est irradié pendant 10 mn dans les conditions mêmes où le sera l'échantillon (position, température, flux). "Révélé" ensuite dans l'ammoniac, il visualise le faisceau d'électrons, en emplacement comme en intensité (mais assez grossièrement pour ce dernier point).

Nous avons effectué les recuits isothermes et les expériences de relaxation en jouant sur la pression de régulation du bain d'hydrogène. Nous sommes alors limités :

- par la puissance du cryogénérateur pour les basses températures ($T > 17$ K),
- par la pression maximale admissible par les fenêtres du cryostat pour la température maximale ($T < 25$ K).

La régulation de température est toujours aussi stable ($\pm$ 0,01 K) pour toute cette gamme de températures.

III.2.2 - Mesures de la résistance, du flux et de la température

Dans la suite, nous allons étudier :

- des courbes de production ΔR (ϕ)
- des courbes de recuits isothermes ΔR (temps) à une température T qui doit être bien connue.

L'ensemble des données est recueilli par une chaîne de mesures conçue par S. BOUFFARD et al. / 43 / commandée par un calculateur de bureau HP 9815. Une horloge permet au calculateur de commander à intervalles définis à la demande par l'expérimentateur un cycle de mesure (défini aussi par l'expérimentateur) et qui comprend, dans mon cas, les mesures :

- de l'heure,
- de deux thermocouples cuivre-constantan,
- du flux intégré,
- du courant instantané d'irradiation,
- de la résistance du ou des échantillons.

Les différences de potentiel sont mesurées par deux voltmètres KEITHLEY 174 d'une résolution de 0,1 μV, sur lesquels nous lisons les thermocouples, la sortie analogique du picoampèremètre (mesurant le courant d'irradiation), les différences de potentiel aux bornes des échantillons et d'une résistance étalon montée en série avec ceux-ci. Chaque mesure est le résultat de la moyenne de 10 lectures successives du voltmètre. L'horloge et l'intégrateur de courant (mesurant le flux intégré d'irradiation) sont lus directement.

Les données brutes peuvent être traitées par le calculateur qui ensuite :

- les imprime,
- les enregistre sur cassette magnétique pour un traitement ultérieur éventuel,
- les trace éventuellement sous la forme souhaitée sur une table X-Y (par exemple $\Delta\rho$ en fonction du temps).

- Mesure de résistance :

Le courant traversant les échantillons est fourni par une alimentation NORTHILLS d'une très bonne stabilité jusqu'à 1 A. Ce courant est mesuré par une résistance étalon de 1 Ω. Pour chaque mesure de résistance :

. les différences de potentiel aux bornes de l'échantillon et de la résistance étalon sont lues simultanément (sur chacun des deux voltmètres) et cela 10 fois ,
. le courant est inversé par un relais ,
. les différences de potentiel sont mesurées de nouveau comme précédemment.

Le calculateur détermine alors la résistance de l'échantillon en fonction de la valeur de la résistance étalon.

- Mesure du flux :

Une cage de Faraday est située derrière l'échantillon. Cette cage est reliée à un picoampèremètre qui fournit la mesure instantanée du flux. La sortie de cet ampèremètre est reliée à un intégrateur de courant qui nous donne le flux total.

Toutefois, pour les basses énergies d'irradiation, la diffusion des électrons entre la première fenêtre du cryostat et la cage (voir figure, Annexe III)

est tellement grande que le courant mesuré par la cage est très inférieur à celui réellement reçu par l'échantillon; J. DURAL a donc conçu une cage escamotable placée derrière le diaphragme mais avant l'échantillon et qui permet d'avoir une mesure meilleure du courant instantané (mais, bien sûr, en coupant momentanément l'irradiation).

Nous avons donc mesuré au début de l'expérience le courant sur la cage escamotable I_{CE}. Le courant instantané sur la cage arrière I_{CF} est mesuré et intégré tout au long de l'irradiation, et les deux valeurs du courant instantané et du flux total sont ensuite multipliées par le rapport I_{CE}/I_{CF}. Ce rapport, bien reproductible d'une expérience à l'autre, est compris dans notre cas entre 1,6 (pour des irradiations à 2,3 MeV) et 2,5 (pour 1,35 MeV).

- Mesure de température :

Nous disposons de plusieurs moyens de mesurer la température :

. deux thermocouples,
. la pression au-dessus du bain d'hydrogène,
. la résistance de l'échantillon,

que nous utilisons dans différentes circonstances.

Au cours des irradiations, nous fixons une température du bain par la pression ; le léger échauffement de l'échantillon sous flux est alors mesuré par l'écart de résistance lorsqu'on coupe l'irradiation.

Pour les recuits ou les relaxations, la température est mesurée par la pression, beaucoup plus précisément que par les thermocouples.

Ces derniers ne sont utilisés que comme contrôle ou pour des recuits à une température supérieure à 25 K (nécessitant un chauffage extérieur).

La figure 27 représente la courbe pression-température de l'hydrogène tirée des données de R.R. CONTE / 44 /, utilisée pour nos mesures de températures.

La figure 28 donne la résistivité de phonons du molybdène en fonction de la température, déduite de nos expériences.

III.2.3 - Echantillons et montage expérimental

Les échantillons utilisés sont de deux types :

- des fils fournis par M.R.C., d'un diamètre de 120 µm, polycristallins, et d'une pureté assez médiocre. Ils sont étudiés soit à l'état brut de tréfilage, soit après recristallisation ;
- un monocristal fourni par P. LUCASSON, sous forme de lame, recuit, et de pureté bien meilleure.

Les caractéristiques des échantillons sont réunies dans le Tableau V à la fin de ce paragraphe.

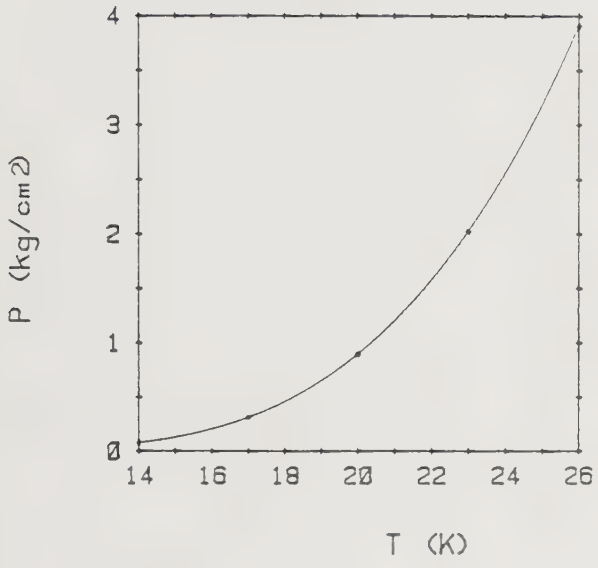


Figure 27 - Pression de vapeur saturante de l'hydrogène (d'après R.R. CONTE / 44 /).

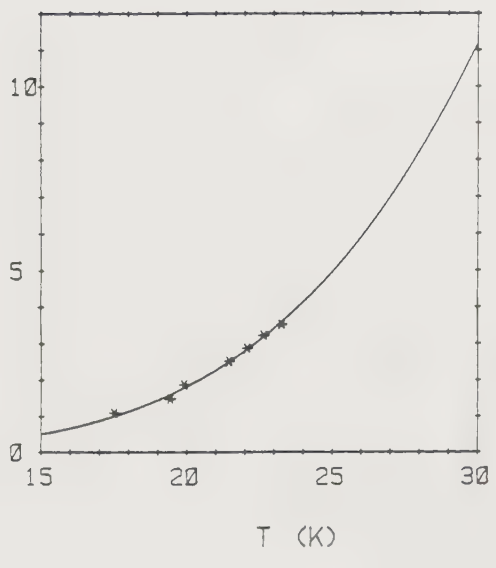


Figure 28 - Résistivité de phonons (nΩcm) en fonction de la température.

- Montage expérimental :

Les échantillons sont montés dans une micromachine de traction décrite en I.2.1 pour toutes les irradiations et les isothermes. Grâce à cette machine nous pouvons à tout moment appliquer à l'échantillon une traction uniaxiale d'amplitude souhaitée, dans le sens de la longueur de l'échantillon (ou la relâcher). Nous pouvons simultanément mesurer la résistance de l'échantillon, avec un courant parallèle à la grande dimension de cet échantillon et donc à la contrainte. Les contraintes maximales appliquées aux échantillons vont de 20 à 50 kg/mm^2 et figurent sur le Tableau VII. Elles sont limitées par la fragilité du montage au niveau des mors (mors inférieur en particulier) et sont donc sans autre rapport avec la limite élastique de l'échantillon que de lui être inférieures !

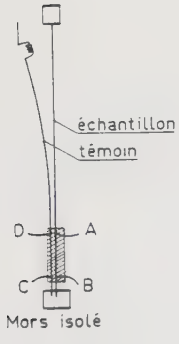


Figure 29 - Montage expérimental. La zone exposée au faisceau d'électrons est hachurée.

Pour toutes les expériences sur des fils, deux fils de molybdène de même provenance et même histoire, sont irradiés ensemble. Ils sont disposés comme le montre la figure 29 avec un écartement inférieur à 1 mm de façon à être irradiés de la même façon (ce qu'on vérifie sur les courbes d'endommagement). L'un seulement des deux peut ensuite être soumis à une contrainte, l'autre servant de témoin. Pour le monocristal, en raison de sa largeur, nous n'avons pas pu placer de témoin.

TABLEAU V

Caractéristiques des échantillons de molybdène

Utilisé pour les expériences	Forme	Provenance	Diamètre ou épaisseur (µm)	Largeur éventuelle	Longueur de l'échantillon l_1 mm (*)	l_2 mm (**)	$\frac{\rho_{300K}}{\rho_{4K}}$	Etat initial
Mo 1 et Mo 2	fil (polycristal)	M.R.C.	120	-	7,5	≅ 61	62	recuit 1/2h vers 1300°C
Mo 4	"	"	120	-	9,5	34,6	89	"
Mo 7	"	"	120	-	7,6	≅ 35	46	brut de tréfilage
Mo 9 et Mo 10	"	"	120	-	9,2	50,1	46	"
Mo 11 et Mo 12	plaquette (monocristal)	Pr. LUCASSON (***)	45	≅ 0,6 mm	9,1	17,2	1210	recuit

(*) l_1 : longueur entre les prises de potentiel.

(**) l_2 : longueur soumise à la traction.

(***) l'échantillon, extrait d'un cylindre monocristallin fourni par l'Ecole des Mines de Saint-Etienne, a été découpé, recuit et orienté par le laboratoire du Professeur LUCASSON.

III.3 - PRODUCTION DES DÉFAUTS

III.3.1 - Défauts produits

L'énergie fournie aux électrons a varié suivant les expériences entre 1,35 MeV et 2,3 MeV (dans la plupart des cas on a E = 1,35 MeV ou E = 1,5 MeV). L'énergie réelle d'irradiation est plus faible des 80 keV perdus dans la première fenêtre d'inox du cryostat et l'hydrogène liquide précédant l'échantillon.

Le nombre n de paires de Frenkel créées par choc efficace est alors donné par le Tableau VI suivant :

TABLEAU VI

Energie MeV fournie	1,35	1,50	2,30
Energie d'irradiation MeV	1,27	1,42	2,22
n maximum (*)	1	1	2
<n> moyen (**)	1	1	1,1

(*) à partir du critère de KINCHIN et PEASE $n_{max} = \frac{T_m}{2\ E_d}$.

(**) tiré des calculs de section efficace de S. OEN / 17 / :

$$\langle n \rangle = \sigma_d \text{ totale} / \sigma_d \text{ primaire.}$$

La température des échantillons au cours de l'irradiation, mesurée par leur résistivité, était de 21 K pour les premières expériences (n° 1, 2, 4, 5) et de 20 K pour les suivantes (n° 7, 9, 10, 11, 12).

La concentration maximale atteinte dans les échantillons a toujours été inférieure à $2{,}5.10^{-4}$ (voir Tableau VII).

Dans ces conditions, on peut dire des défauts produits :

. qu'il s'agit de paires de Frenkel isolées (et non pas de petits amas),
. qu'ils sont en faible concentration,
. que, leur température de production se trouvant entre les sous-stades I_1 et I_2 du stade I (voir figure 26), les paires les plus proches sont éliminées ; il reste alors des paires plus ou moins proches (I_2, I_3) ainsi sans doute que des interstitiels libres.

TABLEAU VII

Expérience	Etat initial	Résistivité initiale à 20 K (nΩcm)	Energie d'irradiation MeV	δρ maximum (nΩcm)	Concentration maximale atteinte (***)	Contrainte maximale appliquée (kg/mm²)	Irradié sous contrainte? (*)	Recuit sous contrainte ? (**)
Mo 1	recuit	89,6	1,35	115,4	9.10^{-5}	48	non	non
Mo 2	Mo1 irradié + recuit à 300 K	111	2,5 1,5 1,9 1,4 2,3	88 +51 +7,1 +2,2 + 276	$2,5.10^{-4}$	38	oui	non
Mo 4	recuit	63,7	1,35	14,2	10^{-5}	50	oui	non
Mo 7	brut de tréfilage	121	1,35 puis 2,50	12,5 + 262	2.10^{-4}	56	non	oui
Mo 9	"	120,2	1,35	78,3	6.10^{-5}	21,3	non	oui
Mo 10	Mo 9 irradié + recuit à 300 K	134,5	2,30	230	$1,9.10^{-4}$	22,5	non	oui
Mo 11	Monocristal recuit	5,7	1,50	245,5	$1,9.10^{-4}$	33	non	oui
Mo 12	Mo 11 irradié + recuit à 300 K	30,4	2,50	256,6	$2,2.10^{-4}$	30	non	oui

(*) oui lorsque l'irradiation de l'échantillon a eu lieu principalement sous contrainte.

(**) oui lorsque la contrainte a été appliquée à un moment de recuit.

(***) y compris les défauts restant éventuellement d'une précédente expérience.

III.3.2 - Courbes de production de résistivité

L'ensemble des caractéristiques des irradiations pour chaque expérience (énergie, courant, endommagement, ...) est réuni dans le Tableau VII ci-contre.

Nous avons suivi l'endommagement des échantillons au cours des irradiations par la mesure de la résistivité induite. La figure 30 représente les endommagements à trois énergies typiques (1,35 MeV, 1,5 MeV et 2,3 MeV). Nous y avons porté , pour les trois expériences Mo 1 (1,35 MeV), Mo 10 (2,3 MeV), et Mo 11 (1,5 MeV), la résistivité induite en fonction du flux, ce dernier étant corrigé comme il est expliqué dans III.2.2.

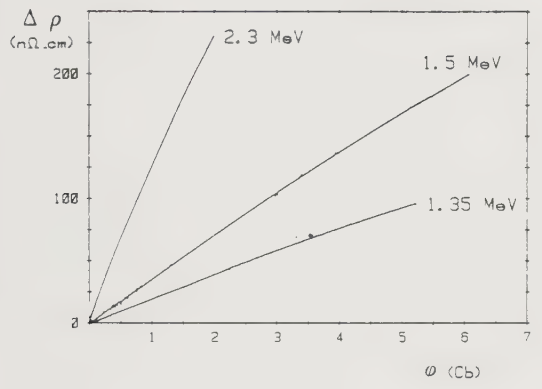


Figure 30 - Résistivité induite en fonction du flux au cours d'irradiations aux électrons.

Ces courbes montrent, par leur régularité, que la température de l'échantillon est bien stable et homogène (les points aberrants constatés sur la courbe à 1,5 MeV proviennent non pas d'un échauffement mais d'un défaut de mesure). Elles présentent une légère courbure négative, normale à ces concentrations (car la pleine échelle de 250 nΩcm correspond à une concentration proche de 2.10^{-4}).

Entre deux expériences à même énergie, l'endommagement est bien reproductible, comme le montre la figure 31. Les courbes d'endommagement à 1,35 MeV y sont figurées plus en détail, On constate :

- que la vitesse d'endommagement est la même pour les trois expériences (surtout compte tenu de l'imprécision sur le flux) ,
- que les fluctuations de température au cours de l'irradiation sont faibles (une division sur l'échelle des Y, soit 0,5 nΩcm, correspond à un échauffement d'environ 1 K).

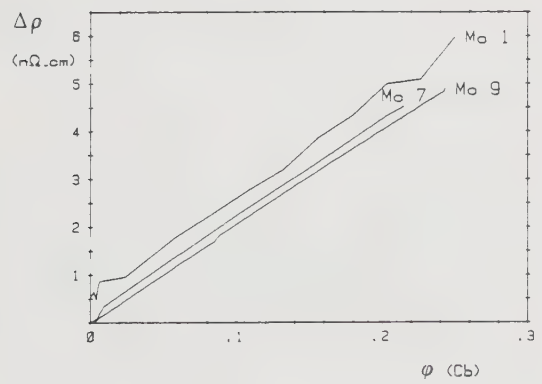


Figure 31 - Comparaison des vitesses d'endommagement (mesurées par la résistivité) pour trois échantillons (la courbe de Mo 1 est décalée artificiellement de 0,5 nΩcm).

III.3.3 - Influence d'une contrainte uniaxiale

Les échantillons sont irradiés et recuits dans la micromachine de traction décrite en I.2.1 pour nous permettre d'étudier l'effet d'une traction uniaxiale sur la création de défauts. Une contrainte uniaxiale doit notamment modifier légèrement les énergies de seuil et la forme des volumes de recombinaison. Nous avons mentionné en III.1.1 que PONSOYE / 6 / et POUCHOU et al. / 42 / n'ont vu aucun effet d'une contrainte de ce type sur la production de résistivité, respectivement par des neutrons rapides dans le tungstène et par des fragments de fission dans le molybdène. Il nous a cependant semblé nécessaire de reprendre ces expériences avec des électrons d'énergie proche du seuil, situation où les conditions de création des défauts sont radicalement différentes.

Dans le cas d'irradiations de fils, nous disposons dans la capsule d'un échantillon et d'un témoin très proches irradiés simultanément. Nous avons donc deux moyens de mesurer l'effet de la contrainte :

- appliquer la traction sur l'échantillon et comparer les endommagements de l'échantillon et du témoin,
- alterner sur l'échantillon des périodes d'irradiation avec et sans contrainte.

En pratique nous avons utilisé la deuxième méthode, plus sensible, le témoin nous servant et à vérifier que l'irradiation se poursuit normalement, et à corriger la courbure éventuelle des tracés.

Au cours des deux premières expériences (Mo 1 et Mo 2) nous avons observé une baisse sensible de la vitesse de production de résistivité $\Delta\dot{\rho} = \Delta\rho/\Delta\phi$ à 1,35 MeV lorsqu'on applique la contrainte (voir la figure 32) ; cet effet, mesuré par le rapport $k = \Delta\dot{\rho}_o/\Delta\dot{\rho}_\sigma$ (qui vaut 1 lorsque l'effet est nul) diminue lorsque l'énergie E d'irradiation augmente, jusqu'à disparaître vers 1,5 MeV, comme le montre le Tableau VIII.

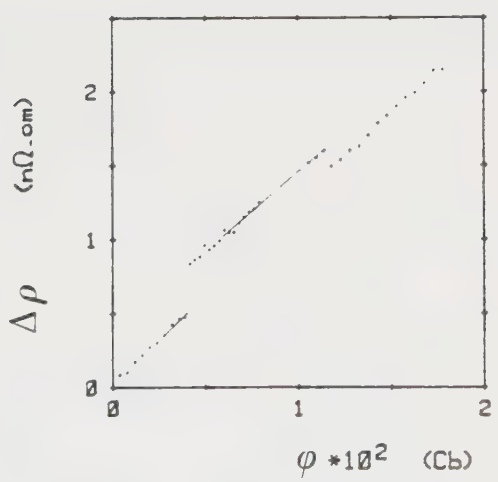


Figure 32 - Endommagement de l'échantillon Mo 2 avec contrainte (partie centrale) et sans, à 1,35 MeV.

Cependant, dans d'autres expériences réalisées en principe dans les mêmes conditions, nous n'avons pas observé cette influence de la contrainte. Ce résultat négatif implique l'existence d'un paramètre expérimental que nous ne contrôlons pas, mais qui n'est pas :

TABLEAU VIII

E_{MeV}	1,35	1,40	1,50	1,50	1,90	2,50	2,50
k	1,10±0,04	1,19±0,0	1,01±0,08	1,01±0,03	1,01±0,04	0,98±0,02	1,01±0,2
Expérience	1	2	1	2	2	2	2

- la position de l'échantillon, car à contrainte dite nulle nous avons pris soin de tendre légèrement ce dernier ; le "déplacement" longitudinal dû ensuite à la seule déformation élastique, est insuffisant pour rendre compte de l'effet ,
- la température d'irradiation, car nous pouvons la reproduire précisément (à moins de 0,05 K près) ,
- la pureté de l'échantillon car plusieurs fils MRC de même provenance ont donné des résultats différents, tandis que l'effet a été observé à la fois sur un fil MRC de pureté médiocre et sur le monocristal.

Ce paramètre pourrait être :

- une très légère différence d'orientation de l'échantillon par rapport au faisceau d'électrons si le phénomène est très anisotrope,
- un effet d'impuretés gazeuses introduites au cours de certains recuits (car les deux échantillons sur lesquels on a observé une influence de la contrainte ont été recuits),
- ... ?

Nous pouvons donc seulement conclure que :

1 - il existe des conditions - que nous n'avons pas maîtrisées - où une contrainte uniaxiale diminue la vitesse de production de résistivité, l'effet étant d'environ 15 % pour des électrons de 1,35 MeV à 21 K (sous une traction d'environ 40 kg/mm^2).

2 - au moins aux fortes énergies d'irradiation (E > 1,5 MeV) il n'y a pas d'effet visible de la contrainte appliquée sur la vitesse d'augmentation de la résistivité.

III.4 - RECUIT DES DÉFAUTS

De même que pour la création des défauts, nous nous sommes intéressés à l'influence d'une contrainte uniaxiale sur la guérison des défauts et ceci de deux façons :

- en comparant la guérison (sans contrainte) de défauts créés avec et sans contrainte,
- en appliquant, ou non, une contrainte au cours de recuits isothermes.

Tous les recuits suivants sont des recuits isothermes, généralement de longue durée (plusieurs heures) et suivis en résistivité. Les isothermes obtenues ne sont alors pas linéaires et nous commencerons par étudier en III.4.1 la cinétique des recuits. Ensuite, en III.4.2, nous essaierons d'en tirer des énergies d'activation. Enfin, en III.4.3, nous pourrons étudier l'effet d'une contrainte extérieure.

III.4.1 - Cinétique des recuits

Pour isoler l'effet de la contrainte, nous avons réalisé des recuits isothermes avec et sans contrainte d'échantillons irradiés avec ou sans contrainte, que nous pouvons comparer entre eux et avec les mesures de cinétique déjà existantes.

Tous nos recuits se situent entre 22,5 K et 25 K, c'est-à-dire au cours des sous-stades I_{2a} et I_{2b}, comme le montre la figure 26. Il existe dans ce domaine des études de cinétique par AFMAN / 37 /, déjà citées au paragraphe 1.2 . AFMAN obtient pour le stade I_{2a} (vers 21 K) :

$$\frac{d\rho_D}{dt} = - 0{,}5.10^{13} \, (\rho_D - \rho_{D_a}^{\infty}) \exp (- E_a/kT) \qquad (1)$$

où $\rho_{D_a}^{\infty}$ serait la résistivité restant à la fin du stade de recuit si aucun autre processus n'intervenait (ce qui n'est pas le cas puisque les stades I_{2a} et I_{2b} se recouvrent partiellement). Cette cinétique, qui donne une isotherme du type :

$$\Delta\rho \, (t) \, / \, \Delta\rho_{max} = C \, \{ \, 1 - \exp (- xt) \, \} \qquad (2)$$

où $x = \nu_o \exp (- E_a/kT)$, est une cinétique classique d'annihilation de paires proches, avec d'après AFMAN :

$$E_a = 66 \text{ meV} \qquad \text{et} \qquad \nu_o = 0{,}5.10^{13} \text{ sec}^{-1}.$$

Pour le sous-stade I_{2b} (vers 25 K), AFMAN décrit sa seconde moitié par :

$$\frac{d\rho_D}{dt} = - K \, (\rho_D - \rho_{D_b}^{\infty})^3 \exp (- E_b/kT) \qquad (3)$$

où E_b = 76 meV, ce qui est la forme déterminée par SCHROEDER / 45 / pour une recombinaison corrélée, et qui aboutit à une isotherme :

$$\Delta\rho\ (t)\ /\ \Delta\rho_{max} = A\ \{\ (1 + kt)^{-1/2} - 1\ \} \qquad (4)$$

avec $k = 2\ K \exp\ (-\ E_b/kT)$.

Notre domaine de mesure, principalement situé dans le sous-stade I_{2a}, mord un peu sur le sous-stade I_{2b}. Dans ces conditions notre cinétique devrait être une somme des deux termes (2) et (4) Cependant, le deuxième terme est beaucoup plus lent que le premier, comme le montre la figure 33.

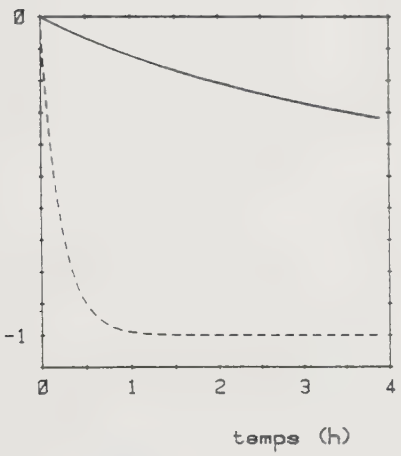


Figure 33 - Termes (2) (en tirets) et (4) de la cinétique de AFMAN à 21,3 K (amplitudes arbitraires).

En général les recuits sont assez courts pour être bien décrits par une exponentielle du type (2), où nous avons deux paramètres, C et x, à ajuster (voir la figure 34).

Pour des recuits très longs (le maximum étant de 40 heures environ), cela n'est plus possible. Nous avons alors utilisé une combinaison de termes des types (2) et (4) pour décrire l'isotherme, en tenant compte du fait que le terme exponentiel (2) se sature beaucoup plus vite que (4).

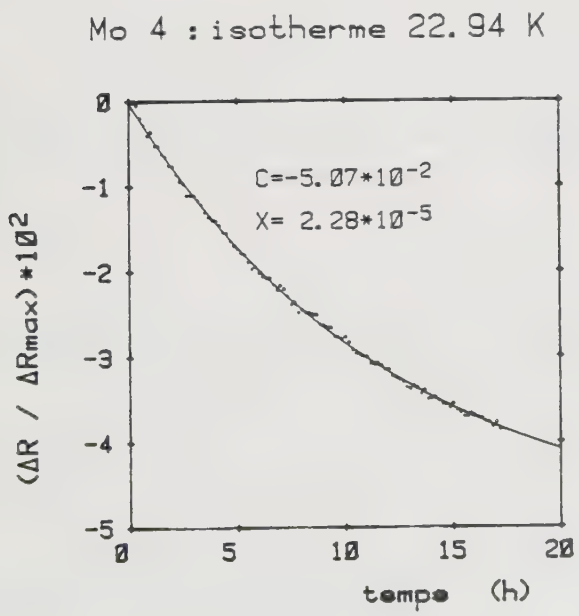


Figure 34 - Ajustement par une exponentielle C (1-exp(- Xt)) de la courbe de recuit isotherme à 22,94 K de Mo 4.

Par exemple, les figures 35.a et 35.b montrent pour le recuit à 24,00 K de Mo 12 respectivement, l'analyse en une exponentielle de type (2) et la description par une somme de termes (2) et (4).

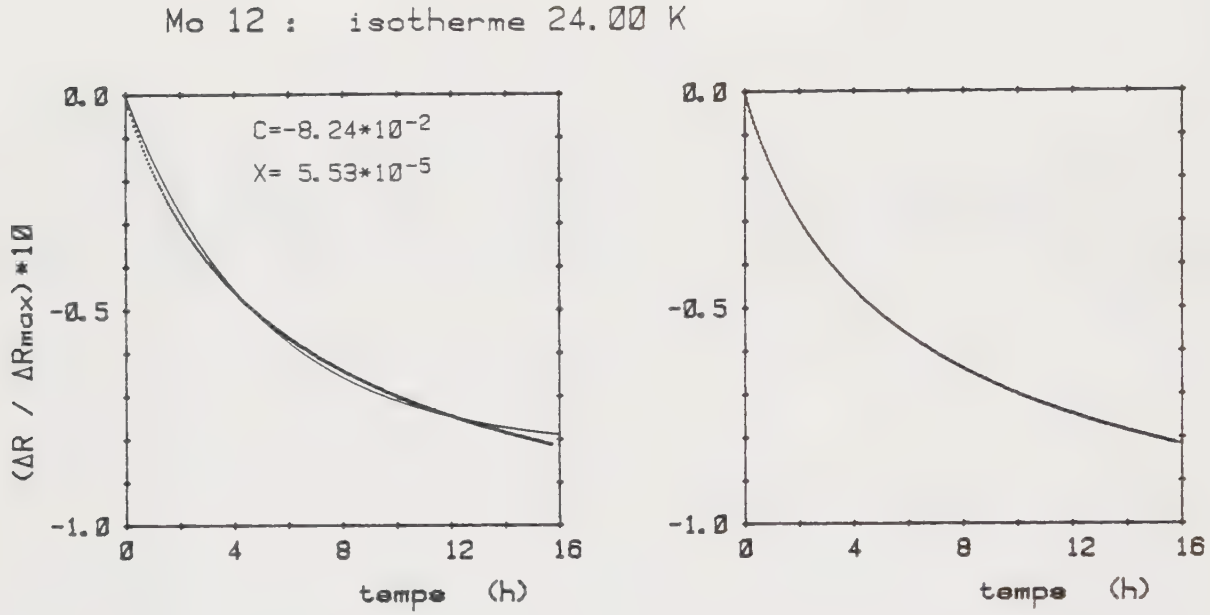


Figure 35.a

Figure 35.b

Courbe de recuit isotherme de Mo 12 sur laquelle on a ajusté :

a) une exponentielle (la meilleure possible),
b) une courbe de type AFMAN.

La description par quatre paramètres (figure 35.b) est bien entendu meilleure ! Elle est en même temps justifiée par le fait que le terme non exponentiel (4) est très largement dominant, comme le montre la figure 36. Il faut pourtant dire que les paramètres k, déterminés à plusieurs températures, refusent de se mettre sous la forme :

$$k = 2\ K \exp\ (-\ E_b/kT)$$

Dans ces conditions, nous nous contenterons, pour les recuits longs, d'utiliser la formule (4) comme un moyen commode pour décrire nos cinétiques, sans lui attribuer une signification physique précise.

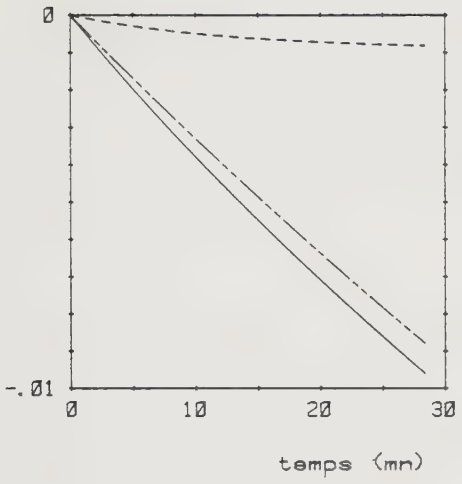


Figure 36 - Décomposition en deux termes des types (2) (en tirets) et (4) (tirets irréguliers) de la courbe de type AFMAN (en continu) ajustée sur l'isotherme 24 K de la figure 35.

III.4.2 - Energies d'activation

Les études de cinétique décrites précédemment nous ont permis, dans certains cas, d'évaluer des énergies d'activation et par plusieurs méthodes (suivant que la courbe $\Delta R(t)$ est linéaire ou non) :

- pour des recuits courts et linéaires à différentes températures par le tracé du diagramme d'Arrhénius du logarithme des pentes (cas des expériences Mo 2 et Mo 10),
- pour des recuits plus longs, non linéaires, par la méthode du changement de pentes (les pentes étant évaluées soit par mesure directe, soit par l'intermédiaire des exponentielles calculées, ce qui donne de meilleurs résultats pour les isothermes à forte courbure).

Nous n'avons pas pu tirer de résultats concluants de l'étude des constantes de temps car pour une expérience donnée le nombre d'isothermes analysables en exponentielles est toujours très réduit.

III.4.2.1 - Guérisons linéaires

Mo 2 : Il s'agit de recuits sans contrainte de défauts créés sans contrainte dans le témoin et sous contrainte dans l'échantillon. Les figures 37.a et 37.b représentent le logarithme de la pente des recuits $\Delta R/\Delta t$ dans une unité arbitraire, en fonction de l'inverse de la température, 1/T. Tous les recuits sont linéaires, sauf le dernier à 24,49 K, pour lequel nous avons utilisé la pente initiale. Ils se situent tous à l'intérieur du sous-stade I_{2a}.

Les points sont bien alignés dans les deux cas et permettent de déterminer une énergie d'activation :

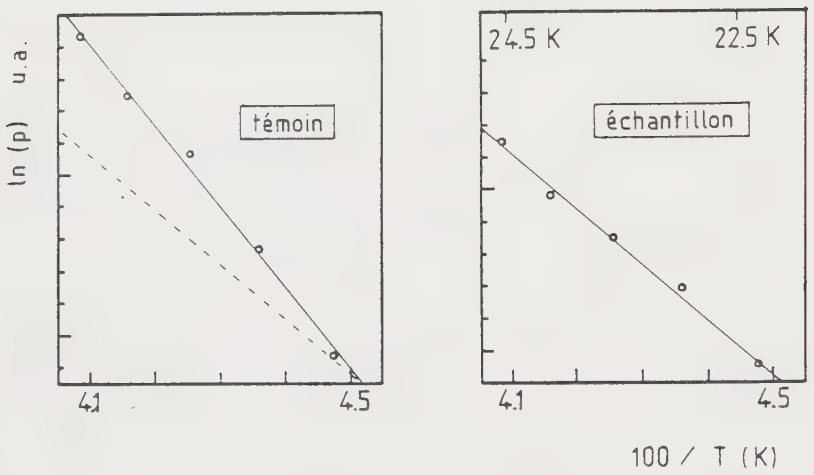


Figure 37 - Diagramme d'Arrhénius pour les guérisons linéaires du témoin irradié sans contrainte et de l'échantillon irradié tendu (la pente de l'échantillon est rappelée en tirets).

W ≅ 44 meV pour le témoin irradié sans contrainte

W ≅ 29 meV pour l'échantillon irradié sous contrainte

Bien que les recuits aient eu lieu simultanément, donc à températures rigoureusement égales, et sans contrainte, l'énergie d'activation obtenue pour l'échantillon est très significativement plus faible que celle du témoin (voir figure 37.a). Il convient ici de souligner que ces expériences correspondent précisément aux cas où nous avons observé une nette diminution de la vitesse de production de résistivité sous contrainte (voir figure 32 du § III.3.3).

Nous retiendrons de ce qui précède que lorsque l'influence de la contrainte est visible sur la vitesse de production de la résistivité, les paires ainsi créées se guérissent, du moins au stade I_{2a}, avec une énergie (29 meV) très inférieure à l'énergie de guérison mesurée à même température pour des paires créées sans contrainte (43 MeV). Elles ont donc une structure différente.

Mo 10 : De la même façon, nous avons pu tracer le diagramme ln p (p étant la pente du recuit : $\Delta R/\Delta t$) en fonction de 1/T pour les premiers recuits de l'expérience Mo 10. C'est la figure 38 où nous avons reporté les points correspondant au témoin et à l'échantillon recuit sans contrainte. Les mesures sous contrainte sont assez imprécises mais, dans cette limite, les résultats ci-dessous montrent que l'énergie d'activation est insensible à une contrainte appliquée au cours du recuit :

Témoin	$W \cong (51 \pm 10)$ meV
Echantillon non contraint	$W \cong (48 \pm 15)$ meV
Echantillon contraint	$W \cong (55 \pm 30)$ meV

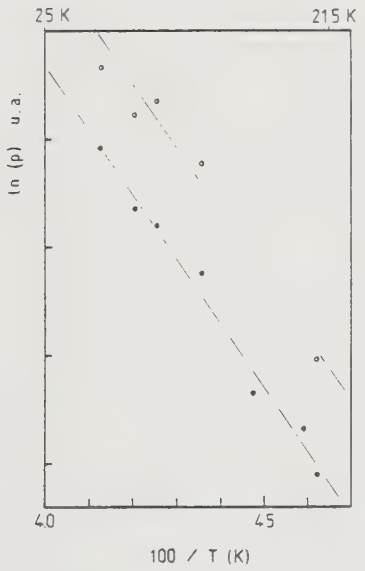


Figure 38 - Diagramme d'Arrhénius des pentes des recuits linéaires de l'expérience Mo 10 pour l'échantillon détendu (trait continu) et le témoin (tirets et points noirs).

III.4.2.2 - Guérisons non linéaires. Méthode des pentes

Au cours d'un recuit non linéaire, la concentration de défauts varie de façon trop importante pour que nous utilisions la méthode précédente.

La méthode du changement de pente consiste à comparer la pente finale p_{f_1} d'un recuit à température T_1 à la pente initiale p_{i_2} du recuit suivant à température T_2 (figure 39). Les deux températures T_1 et T_2 doivent se trouver à l'intérieur du même stade (pour correspondre au même processus). Les concentra-

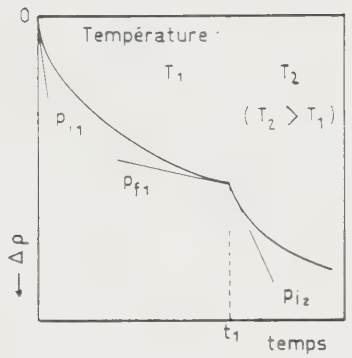


Figure 39

tions de défauts dans les deux cas sont alors égales, et si la cinétique est de la forme

$$\frac{dc}{dt} = - K (c) \exp (- W / kT)$$

on peut écrire :

$$\ln \frac{p_{i_2}}{p_{f_1}} = - \frac{W}{k} \left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1} \right) \qquad (5)$$

La précision est d'autant moins bonne que les écarts de température sont plus petits (les calculs d'erreurs font l'objet de l'Annexe V).

Mo 4 : C'est le cas de Mo 4, puisque tous les recuits ont eu lieu entre 22,3 K et 24,5 K.

Les Tableaux IX et X suivants donnent les valeurs obtenues pour chaque changement de pente, pour l'échantillon et le témoin.

L'erreur sur W est introduite principalement par les faibles écarts de température. Aussi avons-nous calculé des énergies à partir de recuits non consécutifs (ce qui suppose qu'ils appartiennent au même sous-stade) en ajoutant simplement les équations (5), ce qui donne :

$$\sum_{l=1}^{n} \ln \frac{(p_i)_{l+1}}{(p_f)_l} = - \frac{W}{k} \left(\frac{1}{T_{n+1}} - \frac{1}{T_1} \right)$$

Les erreurs sur les pentes s'ajoutent, mais l'écart de température est augmenté.

Dans cette expérience Mo 4 l'échantillon a, comme Mo 2, été irradié sous contrainte mais sans influence visible sur la vitesse de production.

Compte tenu de la forte barre d'erreur, on ne constate pas (à l'inverse de Mo 2) d'influence de la création sous contrainte sur l'énergie d'activation.

On peut donner comme valeur finale pour Mo 4 :

$$W \simeq (60 \pm 15) \text{ meV}$$

Mo 10 : Pour Mo 10, nous avons poursuivi les recuits dans un four jusqu'à une température de 35,5 K, c'est-à-dire en recouvrant les différents sous-stades I_{2a}, I_{2b} et I_3.

Echantillon et témoin ont été irradiés sans contrainte et recuits de même (la contrainte n'étant appliquée à l'échantillon que pendant de courtes périodes).

TABLEAU IX

Energies d'activation calculées pour le témoin Mo 4
d'après la méthode des pentes

Température	22,33 K	22,94 K	23,48 K	24,48 K
p_i (unités arbitraires)	-	1,03 ± 2 %	0,75 ± 5 %	1,83 ± 12 %
p_f (unités arbitraires)	6,17 ± 3 %	2,46 ± 11 %	5,8 ± 12 %	-
Energie en meV calculée				
* entre 2 températures successives		W = (38±7)	W = (96±22)	W = (57±14)
* de 2 en 2 températures		W = (65±11)		W = (71±14)
* entre les extrêmes		W = (61±11) meV		

TABLEAU X

Energies d'activation calculées pour l'échantillon Mo 4
d'après la méthode des pentes

Température	22,33 K	22,94 K	23,48 K	24,48 K
p_i (unités arbitraires)	-	1,34 ± 2 %	0,94 ± 11 %	2,48 ± 7 %
p_f (unités arbitraires)	7,1 ± 6 %	3,34 ± 3 %	0,75 ± 7 %	-
Energie en meV calculée				
* entre 2 températures successives		(47±10) meV	(89±19) meV	(59±9) meV
* de 2 en 2 températures		(66±11) meV		(70±11) meV
* entre les extrêmes		W = (63±9) meV		

Les résultats, résumés au Tableau XI suivant, ne sont justifiés que lorsque les deux recuits successifs relèvent du même processus, ce qui doit être le cas entre 26,4 K et 30,4 K (stade I_{2b}) où W ≅ (54 ± 10) meV, et entre 33 K et 35,5 K (stade I_3) où W ≅ (83 ± 15) meV.

TABLEAU XI

Energies d'activation calculées pour l'expérience Mo 10
(recuits des stades I_{2b} et I_3)

Température de recuit	26,4 K	30,4 K		33,0 K		35,5 K
	P_f	P_i	P_f	P_i	P_f	P_i
Echantillon pente en unités arbitraires	2,26	40	5,9	35,5	16,1	122
Témoin pente en unités arbitraires	2,05	35	7,7	33,0	13,4	107
Energie d'activation échantillon meV	50 ± 5		60 ± 10		82 ± 14	
Energie d'activation témoin meV	57 ± 6		48 ± 8		84 ± 14	

En conclusion de ce paragraphe nous pouvons dire que :

1 - les énergies d'activation, sous-produits de nos expériences, sont d'environ :

(50 ± 10) meV pour I_{2a}

80 meV pour I_3

2 - en général ces énergies ne semblent pas sensibles à une contrainte uniaxiale appliquée :

- soit au moment de la création des défauts,
- soit au cours des recuits.

3 - dans un cas (expérience Mo 2), nous avons observé comme effet d'une contrainte appliquée, à la fois une diminution significative de la vitesse de production sous contrainte et une diminution sensible (de 43 meV à 29 meV) de l'énergie de guérison des défauts créés sous contrainte.

III.4.3 - Influence d'une contrainte uniaxiale sur la vitesse de recuit

Nous n'avons pas pu déceler d'effet de la contrainte sur l'énergie d'activation des recuits (voir § III.4.2). Nous avons étudié aussi l'influence d'une contrainte appliquée au cours d'un recuit sur la vitesse de ce recuit, que nous mesurons par :

$$V = \frac{1}{\Delta\rho_{max}} \frac{d\rho}{dt}$$

Rappelons que KULCYNSKI (pour une pression hydrostatique dans du molybdène) et PONSOYE (pour une contrainte uniaxiale dans du tungstène) ont constaté un net décalage des stades de recuit vers les basses températures (voir § III.1.6). Ces mesures concernent plutôt le stade II.

Pour nos mesures, nous avons d'abord comparé les vitesses de guérison d'un échantillon soumis à une contrainte et d'un témoin recuits simultanément après avoir subi un même endommagement à 1,35 MeV (expérience Mo 9). La figure 40 représente le rapport des vitesses $V_{échantillon}/V_{témoin}$ en fonction de la température de recuit. Ce rapport, nettement différent de 1, augmente fortement entre 22 K et 40 K. Cependant, il faut prendre ce résultat avec prudence car BIGET et al. / 30 / ont montré l'importance énorme des conditions expérimentales (énergie et surtout orientation) sur l'allure du stade I (voir la figure 26 du § III.1.2, page 46). Or bien que l'échantillon et le témoin, bruts de tréfilage, soient extraits d'une même bobine, leur texture (donc leur orientation moyenne) et leur teneur en impuretés peuvent être différentes.

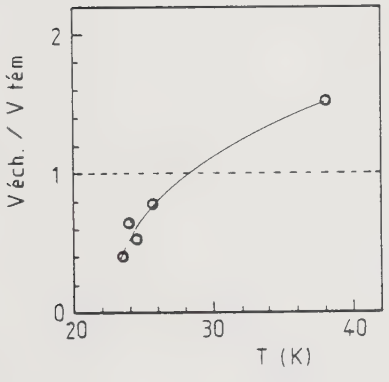


Figure 40 - Rapport des vitesses de guérison de l'échantillon et du témoin (Mo 9) en fonction de la température de recuit.

Nous avons donc ensuite procédé différemment en alternant sur le même échantillon au cours du recuit des périodes avec et sans contrainte. C'est ce que montre la figure 41, où nous avons appliqué la contrainte au temps t_o puis nous l'avons relâchée au temps t_1.

On y observe successivement :

1 - Une variation immédiate de résistance électrique qui n'est autre que l'élastorésistance (voir les Chapitres I et II).

2 - Une augmentation lente de la résistance évoquant une relaxation, avec une "constante de temps" de l'ordre de l'heure, lorsqu'on applique la contrainte.

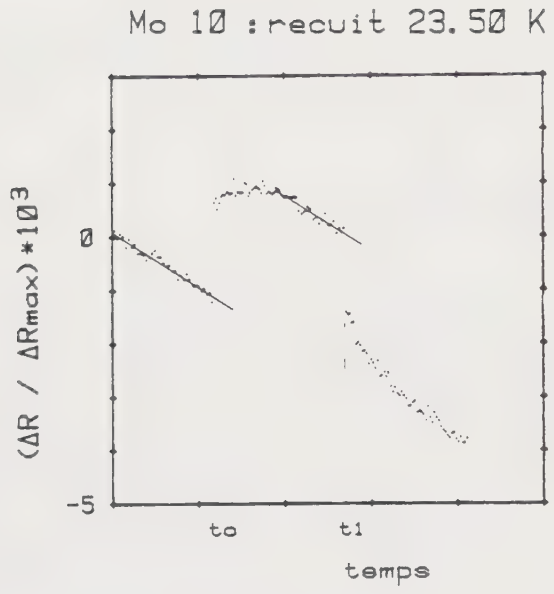


Figure 41 - Guérison au cours d'un recuit isotherme où l'on alterne des périodes sous contrainte (entre t_0 et t_1) et des périodes sans contrainte.

Une relaxation inverse est observée lorsque la contrainte est relâchée. Cet effet sera isolé et étudié en tant que tel au Chapitre IV. Ici il masque en partie le phénomène étudié (guérison) et gêne son analyse.

3 - Enfin, la guérison elle-même qui se manifeste par une diminution de résistivité.

Le rapport entre les vitesses de recuit avec et sans contrainte observées à l'étape 3 précédente, est porté sur la figure 42 et donne les résultats suivants

i) Comme précédemment, très inférieur initialement à 1, ce rapport augmente fortement entre 22 K et 40 K.

ii) A partir de 26 K à 30 K, il devient très proche de 1 et l'on peut dire alors que la contrainte n'a pas d'effet sur la vitesse des guérisons.

En fait, nous ne pouvons tirer de conclusion hâtive du point i). En effet, la présence simultanée de la guérison (point 3) mais aussi d'un phénomène pour le moment parasite que nous avons assimilé à une relaxation (point 2), nous empêche d'affirmer que la guérison 3 est purement une guérison et qu'il ne s'y superpose pas une autre relaxation de temps caractéristique long. Nous verrons

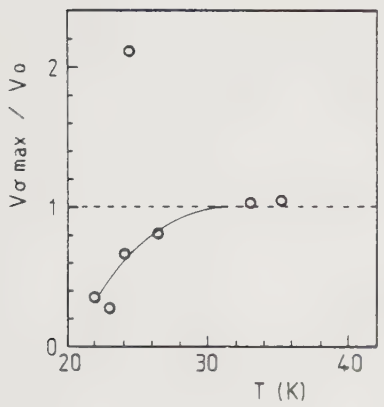


Figure 42 - Rapport des vitesses de guérison avec et sans contrainte pour un même échantillon.

justement plus loin (§ IV.3.2) que l'on observe dans certains cas de telles relaxations "lentes". Une relaxation lente se produisant entre 22 K et 26-30 K pourrait fort bien provoquer l'effet i).

Pour essayer d'éclaircir ce point, nous avons effectué des recuits comportant deux périodes très longues sans contrainte (Δt_o^1 de t = o à t_o et Δt_o^2 de t_1 à t_2), coupées par une période plus courte Δt_σ sous contrainte (de t_o à t_1), comme on le voit sur la figure 43.

Nous espérons, en analysant la cinétique durant Δt_o^1 et en l'extrapolant au-delà de Δt_σ vérifier si la guérison durant Δt_o^2 suit, ou non cette même loi cinétique extrapolée, autrement dit si la période Δt_σ passée sous contrainte a donné lieu, ou non, à un "retard" dans la guérison. La période sous contrainte étant nettement plus courte que celles passées sans contrainte, nous espérons réduire au minimum l'effet de relaxations éventuelles (réversibles).

En pratique l'extrapolation à la seconde branche à contrainte nulle Δt_o^2 d'une courbe ajustée sur la première branche Δt_o^1 est une opération délicate, qui donne des résultats incertains :

- la figure 44 montre un cas où le recuit semble avoir été ralenti par l'intermède Δt_σ de guérison sous contrainte (l'exponentielle ajustée sur la fin de la courbe passe au-desssus de la première branche).
- la figure 45 montre un exemple où, en revanche, l'analyse cinétique (de type "AFMAN", voir § III.4.2) ajustée sur la première branche décrit bien la seconde.

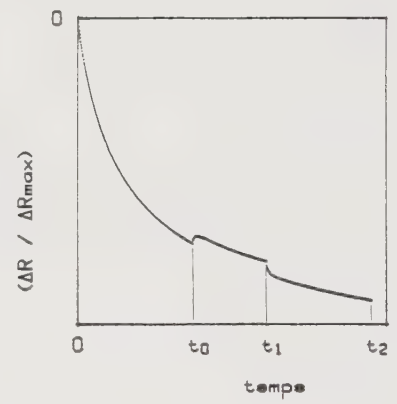


Figure 43 - Recuit isotherme très long, l'échantillon étant tendu entre t_o et t_1.

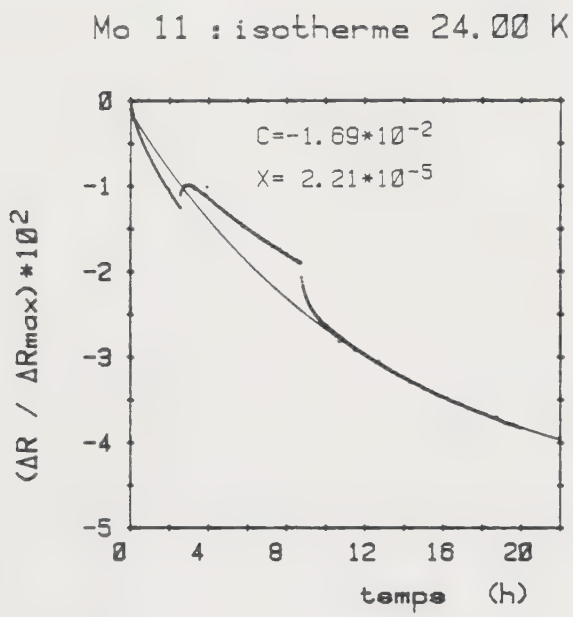


Figure 44

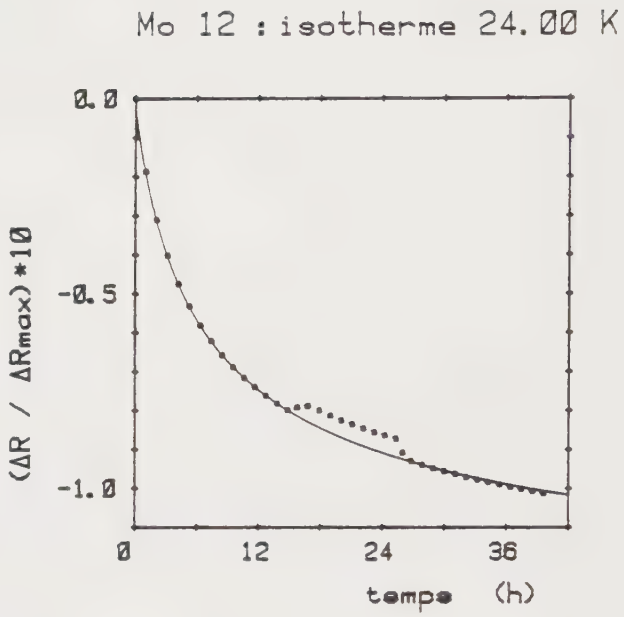


Figure 45

Handicapés par la présence de phénomènes "parasites" de relaxations, nous ne pouvons donc pas conclure actuellement sur l'influence éventuelle d'une contrainte sur la vitesse de guérison. Cependant, en s'en tenant à notre recuit le plus long, donc en principe le plus précis (figure 45), nous pouvons dire que l'effet, s'il existe, doit être faible puisqu'il n'est pas décelable sur cette isotherme après un recuit de 10 heures sous contrainte.

CHAPITRE IV

RELAXATIONS

IV.1 - DÉFAUTS PARAÉLASTIQUES DANS LE MOLYBDÈNE - BIBLIOGRAPHIE

IV.1.1 - Définitions

IV.1.2 - Frottement interne

IV.1.3 - Trainage mécanique (OKUDA)

IV.1.4 - Trainage mécanique (JACQUES)

IV.2 - PRINCIPE DE NOS EXPÉRIENCES

IV.2.1 - Préparation de l'échantillon

IV.2.2 - Déroulement d'une expérience

IV.3 - RÉSULTATS

IV.3.1 - Caractéristiques des relaxations

IV.3.2 - Analyse exponentielle des courbes

IV.3.3 - Influence de la contrainte et de la température sur l'amplitude

IV.4 - DISCUSSION

IV.4.1 - Orientation des défauts

IV.4.2 - Origine de la variation de résistance

IV.4.3 - Comparaison avec les résultats connus

IV.5 - CONCLUSION

Au Chapitre III nous avons vu que des recuits isothermes d'échantillons de molybdène avec alternance d'une contrainte uniaxiale nulle, ou au contraire élevée, nous ont permis de mettre en évidence un phénomène de relaxation.

C'est ce phénomène que nous étudions dans le présent chapitre.

Nous commençons en IV.1 par une revue bibliographique des défauts paraélastiques observés dans le molybdène soit par frottement interne, soit par trainage mécanique. Nous expliquons ensuite en IV.2 le principe de nos mesures, originales par rapport aux deux méthodes citées plus haut. Nous donnons en IV.3 nos résultats et leur analyse, et nous les discutons en IV.4.

IV.1 - Défauts paraélastiques dans le molybdène - Bibliographie

IV.1.1 - Définitions

On peut classer les défauts dans un cristal en deux catégories suivant leur symétrie (voir / 47 /) :

- les défauts diélastiques qui ont une symétrie égale à celle de la matrice (c'est le cas d'une monolacune) ,
- les défauts paraélastiques qui ont une symétrie inférieure à celle de la matrice.

Ces derniers sont seuls susceptibles de se réorienter sous l'effet d'une contrainte uniaxiale. Ce sont donc de tels défauts que nous observons. Leur symétrie est classée comme celle des réseaux de Bravais mais sans tenir compte des symétries de translation (orthorhombique, quadratique, etc...).

IV.1.2 - Frottement interne

La méthode la plus classique pour l'étude de défauts paraélastiques est le frottement interne. Elle a été appliquée aux défauts d'irradiation dans le molybdène par R. PICHON, P. BICHON et P. MOSER / 39 /, puis par S. OKUDA et H. MIZUBAYASHI / 49 /, / 34 /.

Dans les deux cas les défauts sont créés par irradiation aux neutrons rapides (à 27 K pour les premiers, et environ 5 K pour les seconds).

PICHON et al. observent cinq pics de frottement interne. Deux d'entre eux concernent les défauts du stade I et présentent les caractéristiques de la rotation et de la migration de l'interstitiel libre. Le défaut responsable s'annihile vers 42 K.

OKUDA et al. ont d'abord observé le piégeage des dislocations à faible concentration de défauts (< 10^{-6} atom.). Celui-ci s'effectue en deux stades (30 K et 40 K) attribués à deux défauts. Pour de plus fortes concentrations, ils observent encore le frottement interne et obtiennent deux pics à 12 K et 39 K, disparaissant respectivement à 28 K et 42 K. Ils considèrent le second comme incompatible avec la rotation et la migration d'un défauts pour des raisons d'énergie, et l'attribuent à la rotation d'un interstitiel piégé. Le premier pic correspondrait alors à la rotation avec migration de l'interstitiel libre. L'influence de l'orientation sur chaque pic est en faveur d'une symétrie <110> du défaut responsable.

Le Tableau XII suivant résume les caractéristiques trouvées pour les différents pics :

TABLEAU XII

Référence	E_{meV}	$\nu_{sec^{-1}}$	T recuit	Interprétation
PICHON et al. / 39 /	∿ 80	10^{11}	42 K	Rotation de l'interstitiel libre
PICHON et al. / 39 /	∿ 120	-	42 K	Rotation + migration de l'interstitiel libre
OKUDA et al. / 49 /, / 34 /	23	-	28 K	Rotation de l'interstitiel libre
OKUDA et al. / 49 /, / 34 /	83	-	42 K	Rotation d'un interstitiel piégé (di-interstitiel ?)

IV.1.3 - Trainage mécanique (H. MIZUBAYASHI, S. OKUDA)

Le trainage mécanique est une seconde méthode d'étude des défauts paraélastiques, dans un domaine de température complémentaire (frottement interne à fréquence nulle).

Le principe des expériences est généralement le suivant : l'échantillon est un cylindre auquel on peut appliquer une contrainte de torsion, ou la retirer, et ce instantanément. La contrainte étant maintenue constante, la déformation angulaire est amplifiée et mesurée par des systèmes optiques. Les défauts sont créés dans l'échantillon, ici par irradiation, et les mesures ont lieu soit après transfert dans un cryostat spécial (OKUDA), soit in situ (JACQUES / 50 /). L'expérience est alors schématisée par la figure 46 :

- au temps t = 0 on applique la contrainte brusquement, la déformation élastique instantanée ε_o est suivie d'une déformation anélastique $\delta\varepsilon(t)$;

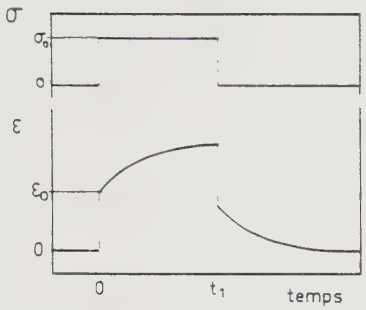


Figure 46

- au temps t_1 on supprime la contrainte ; à la déformation élastique - ε_o succède alors une déformation anélastique opposée à la précédente - $\delta\varepsilon(t)$.

(On peut aussi appliquer une déformation fixe et suivre l'évolution de la contrainte).

Les courbes obtenues, d'allure exponentielle, sont les courbes expérimentales brutes ; pour un phénomène simple, il s'agit en général d'exponentielles du type :

$$\delta\varepsilon(t) = \delta\varepsilon(\infty) \times (1 - \exp(-t/\tau)) \qquad (1)$$

où la constante de temps τ suit une loi d'Arrhénius :

$$\tau = \tau_o \exp(W/kT)$$

Le tracé de courbes telles que celles de la figure 46 à différentes températures permet de déterminer τ_o et W.

En pratique plusieurs phénomènes élémentaires tels que ceux décrits par l'équation (1) peuvent se superposer, nécessitant un dépouillement plus complexe (décomposition des courbes en plusieurs exponentielles de W et τ_o différents).

MIZUBAYASHI et al. / 51 / pour compléter les expériences de frottement interne décrites en IV.1.1 ont fait des mesures de trainage mécanique sur du molybdène irradié dans les mêmes conditions, c'est-à-dire aux neutrons rapides. Ils ont observé des phénomènes anélastiques, principalement aux alentours de 8 K et de 25 K. Dans chaque cas ils ont tracé les courbes de relaxation pour trois températures et les ont ensuite décomposées en plusieurs relaxations simples (5 pour les mesures vers 8 K, et 4 pour les mesures vers 25 K, mais dont certaines sont heureusement largement dominantes). Ils suivent ensuite l'évolution de ces composantes au cours de recuits isochrones. Enfin, un diagramme d'Arrhénius des constantes de temps, rassemblant toutes ces composantes et les mesures de frottement interne permet de comparer les résultats fournis par les deux techniques.

Nous avons résumé les caractéristiques des relaxations principales dans le Tableau XIII (en donnant plus de précisions sur les relaxations vers 25 K qui se rapprochent de nos propres expériences). Les auteurs concluent que les relaxations vers 8 K et vers 26 K sont dues aux mêmes phénomènes que les pics à 12 K et 39 K observés en frottement interne, c'est-à-dire à la rotation sans migration de l'interstitiel libre et d'un di-interstitiel (ou un interstitiel piégé). Les relaxations mineures sont attribuées à des interactions interstitiel-dislocation (car sensibles à l'écrouissage) notées ci-dessous : I + disl.

TABLEAU XIII

Relaxation	E rotation meV	ν rotation sec^{-1}	T recuit	Origine	Amplitude ($10^4 \Delta\varepsilon/\varepsilon_o$)
8 K	23,8	$2,3.10^{13}$	26 K	Rotation de l'interstitiel	8,6
23 K	Composante trop faible pour ces déterminations			I + disl.	0,3
25 K	≅ 70	10^{12}	2 stades : 27 K puis 30 - 35 K	I + disl.	4,7
26 K	84 ± 1	$1,6.10^{14}$	≅ 38 K	Rotation d'un di-interstitiel (*)	15,4
28 K	≅ 70	10^{11}	27 K puis 30 - 35 K	I + disl.	4,3

(*) ou d'un interstitiel piégé.

IV.1.4 - Trainage mécanique après irradiation aux électrons

H. JACQUES et K.H. ROBROCK / 50 / ont étudié très complètement les défauts du stade I dans le molybdène par trainage mécanique. Cette étude est nettement orientée vers la recherche de la migration libre de l'interstitiel.

Les défauts sont créés cette fois par irradiation à 4,7 K avec des électrons d'assez forte énergie. Les expériences sont ensuite identiques à celles décrites précédemment et aboutissent à des courbes de relaxation du type de celles de la figure 46. Leur analyse est alors différente de celle de MIZUBAYASHI et al. : les auteurs définissent deux temps t_1 et $t_2 > t_1$ (ici t_1 = 30 s et t_2 = 300 s) à partir du début de la relaxation, et tracent le diagramme : $y(T) = \delta\varepsilon(t_1) - \delta\varepsilon(t_2)$ en fonction de la température T de mesure. Le phénomène ayant une constante de temps thermiquement activée τ, on constate bien que y(T), très faible à basse température ($\tau >> 300$ s), et de nouveau presque nul à haute température ($\tau << 30$ s), passe par un maximum pour une température T_M caractéristique de la relaxation (à t_1 et t_2 donnés). La courbe y en fonction de T est donc formée de pics correspondants aux différentes relaxations. H. JACQUES effectue des recuits isochrones à une température T_R de son échantillon, et trace les spectres y(T) de T = 20 K à $T = T_R$.

Le nombre de pics observés donne le nombre de processus de relaxation et l'amplitude des pics en fonction de T_R donne leur évolution au cours des recuits isochrones. H. JACQUES obtient ainsi les caractéristiques de quatre relaxations (résumées dans le Tableau XIV) mais conclut qu'aucune ne peut correspondre à la rotation, ou la rotation et migration de l'interstitiel libre.

TABLEAU XIV

Relaxation	Amplitude x 10^3 (*)	W meV	τ_o sec.	Symétrie	T_{Recuit}
1	1,8	75 ± 15	$3.10^{(-15\pm2)}$	Quadratique	25 à 35 K
2	3,3	85 ± 17	$2.10^{(-16\pm2)}$	<110>	vers 28 K puis vers 40 K
3	2,3	90 ± 18	$1.10^{(-16\pm2)}$	<110>	vers 28 K puis vers 35 K
4	0,9	90 ± 18	$1.10^{(-15\pm2)}$	Quadratique	vers 28 K puis vers 40 K

(*) relevées dans / 50 /, ces amplitudes donnent les importances relatives des quatre processus.

Il invoque pour cela deux raisons :

i) aucune relaxation ne semble disparaître en un stade net comme il serait convenable pour un interstitiel libre ,

ii) l'ordre de grandeur des phénomènes observés est beaucoup trop faible pour être compatible avec les données de diffusion HUANG de ERHART / 52 /.

L'auteur, intéressé principalement par la recherche de la migration libre de l'interstitiel, ne donne pas d'interprétation autre des relaxations observées.

IV.2 - PRINCIPE DE NOS EXPÉRIENCES

La procédure que nous avons utilisée pour observer les défauts d'irradiation paraélastiques dans le molybdène est originale et provient de l'observation de phénomènes de relaxation au cours de recuits isothermes classiques suivis en résistivité (voir § III.4.3). Nous exposerons donc dans deux courts paragraphes les traitements subis par l'échantillon avant les mesures, puis le déroulement d'une expérience.

IV.2.1 - Préparation de l'échantillon

Les échantillons sont ceux utilisés pour les études de production et de guérison de défauts sous contrainte uniaxiale. Ce sont soit des fils polycristallins, recristallisés ou non, soit une plaquette monocristalline recuite. Ils ont été irradiés à la température de 20 K environ par des électrons d'énergie de 1,35 MeV à 2,30 MeV et ont subi ensuite divers recuits isothermes du stade I à

des températures inférieures à 25 K. Les caractéristiques des échantillons et de leurs irradiations sont données par les Tableaux V et VI du Chapitre III.

Au cours des recuits isothermes, nous avons observé des phénomènes de relaxation, se superposant à la guérison des défauts (voir la figure 41 du § III.4.3). Nous pourrions donc étudier directement la relaxation sur ces courbes. Cependant, il faut pour cela dissocier ce qui est relaxation de ce qui est guérison et autant les relaxations nous ont gênés pour l'étude des recuits, autant la guérison peut perturber l'étude des relaxation (*). Pour cette raison, nous avons ensuite porté systématiquement nos échantillons vers 28 K à 30 K pendant environ 15 mn (les conditions de ces recuits figurent au Tableau XV). Dans ces conditions, lorsque nous redescendons l'échantillon à une température constante inférieure à 25 K, nous n'avons plus de guérison des défauts. Si nous appliquons alors une contrainte uniaxiale, nous observons des relaxations isolées du recuit.

On notera que nous éliminons de ce fait toutes les relaxations dont le défaut responsable disparaît avant 28 à 30 K.

TABLEAU XV

Expérience	Température du recuit	Durée du recuit mn
Mo 11	(30,1 ± 0,4) K	12-14 mn
Mo 12	(30,2 ± 0,3) K	15 mn

IV.2.2 - Déroulement d'une expérience

Nos expériences sont très similaires à celles de trainage mécanique décrites en 1.2. Les échantillons, d'une longueur élevée par rapport à leurs

---

(*) Nous avons tout de même pu étudier les relaxations à partir des recuits de l'expérience Mo 10 en deux ou trois parties :

$$\sigma = 0$$

puis $$\sigma = \sigma_{max}$$

et éventuellement $\sigma = 0$ de nouveau (voir la figure 44 par exemple).

Pour cela, lorsque le recuit est linéaire, nous avons déduit de la courbe totale la droite de régression linéaire ajustée sur la première partie $\sigma = 0$. L'ensemble des courbes obtenues est réuni au début de l'Annexe VII. Ces courbes sont relativement imprécises et pas toujours analysables.

autres dimensions, peuvent être soumis quasi-instantanément à une traction uniaxiale (et non une torsion) parallèle à leur grande dimension, et qui peut être supprimée aussi rapidement (le temps de mise en place ou de retrait de la contrainte est inférieur à 10 s alors que les relaxations durent plus de 30 mn). La contrainte est maintenue constante, mais au lieu de mesurer la déformation comme dans la technique classique du trainage mécanique, nous suivons la résistance électrique de l'échantillon.

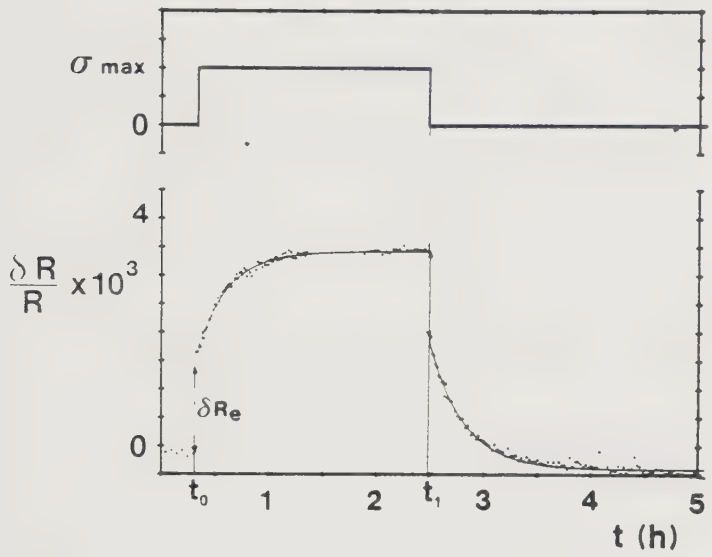


Figure 47 - Expérience de relaxation typique (échantillon Mo 11 à 24,00 K).

La figure 47 illustre le déroulement d'une expérience de relaxation à température T (l'échantillon ayant subi la préparation décrite en 2.1) :

- pour $t < t_o$: la contrainte est nulle et la résistance ne varie pas ,
- à $t = t_o$: nous appliquons la traction σ_{max} ; l'augmentation instantanée et élastique de résistance δR_e est suivie d'une augmentation "anélastique" $\delta R_p(t)$ qui tend vers une valeur de saturation $\delta R_p(\infty)$,
- à saturation, à $t = t_1$, nous relâchons la contrainte ; à la diminution instantanée de la résistance $-\delta R_e$ succède alors une diminution "anélastique" $\delta R'_p(t)$.

Ces courbes sont donc de même nature que les courbes obtenues par trainage mécanique. Elles mesurent de même un phénomène élastique (δR_e) et un phénomène anélastique ($\delta R_p(t)$), et de la même façon nous ne nous intéressons ici qu'à ce dernier (l'augmentation instantanée de résistance δR_e est due à la fois au changement de forme de l'échantillon et à l'élastorésistivité (variation "élastique" de résistivité sous déformation élastique) dont l'étude a fait l'objet des Chapitres I et II.

Dans la suite je désignerai par relaxation directe la relaxation sous contrainte ($t_o < t < t_1$) et par relaxation inverse la relaxation obtenue après relâchement de la contrainte ($t > t_1$).

Dans les deux cas on doit partir d'un état initial bien défini :

- l'état désordonné pour la relaxation directe.
- l'état saturé pour la relaxation inverse.

IV.3 - RÉSULTATS (/ 58 /, / 59 /)

Pour les deux expériences Mo 11 et Mo 12 (expériences successives sur le même monocristal), nous avons effectué de nombreuses relaxations du type décrit par la figure 47 à des températures variables comprises entre 22 K et 24,6 K. Nous présentons dans cette partie l'ensemble des résultats :

- d'abord en dégageant les caractéristiques des courbes obtenues (§ IV.3.1),
- en exposant les résultats de l'analyse de ces courbes (§ IV.3.2),
- en étudiant l'influence de la contrainte et de la température sur l'amplitude du phénomène (§ IV.3.3).

Pour rendre cette partie plus lisible, nous n'y faisons pas figurer l'ensemble des courbes de relaxation. Elles sont rassemblées dans l'Annexe VII.

IV.3.1 - Caractéristiques des relaxations

La figure 47 qui illustre le déroulement d'une expérience (§ IV.2.2) permet aussi de dégager les caractéristiques des phénomènes anélastiques observés :

i) le phénomène est bien décrit par une exponentielle : la courbe en trait continu est l'exponentielle du type :

$$\delta R(t) = \delta R_\infty \, (1 - \exp(-t/\tau)) \qquad (2)$$

ajustée aux points expérimentaux (par une méthode des moindres carrés).

ii) l'effet est réversible : lorsqu'on relâche la contrainte, la relaxation $\delta R'_p(t)$ est opposée à celle sous contrainte :

$$\delta R'_p \, (t - t_1) = - \delta R_p \, (t - t_o)$$

iii) enfin, le sens de l'effet est toujours le même : la résistance augmente sous contrainte.

Nous pouvons ajouter une quatrième caractéristique aux trois points précédents (illustrée par la figure 48) :

iv) après un recuit de 68 mn à (34,8 ± 0,2) K, les phénomènes de relaxation ont complètement disparu.

(Ce recuit correspondrait à un recuit de 10 mn à une température de 37 K à 39,5 K pour des énergies d'activation de 100 meV à 50 meV). Ajoutons que le recuit préliminaire vers 30 K fait probablement disparaître une partie des phénomènes de relaxation.

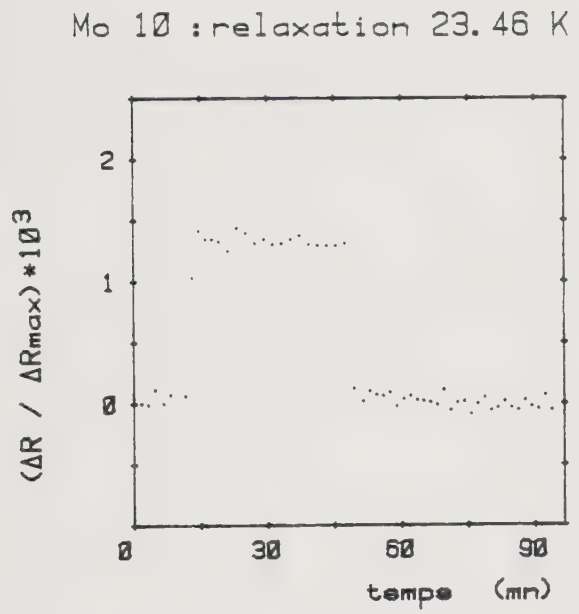


Figure 48 - Après recuit vers 35 K, les phénomènes de relaxation ont disparu.

IV.3.2 - Analyse exponentielle des courbes

Pour des phénomènes de relaxation simple, nous pouvons tout d'abord postuler une loi exponentielle thermiquement activée donc de la forme (2) (voir / 47 /) :

$$\delta R(t) = \delta R_{\infty} \, (1 - \exp \, (- t/\tau)) \qquad (2)$$

avec $\tau = \tau_o \exp \, (W/kT)$.

Nous avons donc cherché à analyser toutes nos courbes expérimentales sous cette forme. Pour cela, et pour comparer des expériences à endommagements différents, nous les avons tracées sous la forme :

$$y(t) = \delta R(t) \; / \; \delta R_{max}$$

où δR_{max} est la résistance totale induite au cours de l'expérience étudiée. Nous ajustons ensuite aux résultats expérimentaux une courbe du type :

$$y(t) = y_\infty \, (1 - \exp(-xt))$$

par une méthode de moindres carrés (avec donc deux paramètres y_∞ et x).

Plusieurs cas se présentent alors :

- ou bien un ajustement de ce type peut donner d'excellents résultats (voir par exemple la figure 47 ou en Annexe VI les figures A6 à A10) ;
- ou alors les points sont trop dispersés ou la courbure insuffisante pour permettre la détermination de deux paramètres (dans le cas limite d'une droite de pente p, $p = y_\infty/\tau$ et il y a donc indétermination pour y_∞ et τ). C'est le cas pour la courbe de la figure A1 de l'Annexe VI ;
- ou enfin, et notamment à basse température (T < 23 K), l'équation (2) est manifestement inapte à décrire correctement le phénomène observé (voir la figure 49). On peut dans ce cas obtenir un bon ajustement à l'aide de deux lois exponentielles simples :

$$\delta R(t) = \delta R_{\infty 1} \, (1 - \exp(-t/\tau_1)) + \delta R_{\infty\, 2} \, (1 - \exp(-t/\tau_2))$$

de constantes de temps nettement différentes ($\tau_2 \gg \tau_1$).

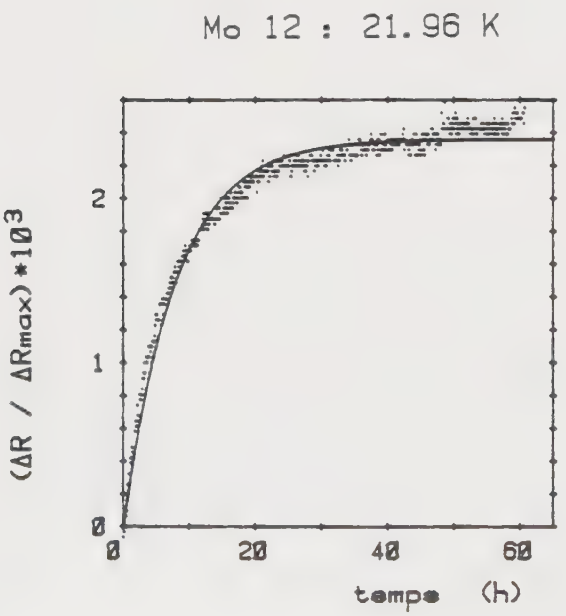


Figure 49 - L'exponentielle ajustée sur l'ensemble des points décrit mal tant le début que la fin de la courbe. Une exponentielle bien ajustée sur les premiers points s'éloigne des derniers (Figure A11 de l'Annexe VI).

Nous reviendrons dans l'Annexe VII sur l'existence de ce double couple de valeurs ($\delta R_{\infty 1}$, τ_1) et ($\delta R_{\infty 2}$, τ_2). Dans le présent chapitre nous nous contentons de n'y voir qu'une correction et nous reportons dans le Tableau XVI les valeurs obtenues pour τ (et $\nu = \tau^{-1}$) en utilisant la loi simple (2) et son ajustement le meilleur aux résultats des expériences Mo 11 et Mo 12 (voir l'ensemble des tracés en Annexe VI). Les valeurs ν (σ_{max}) et ν (0) correspondent respectivement aux

TABLEAU XVI

Expérience	Température °K	ν (σ_{max}) s^{-1}	ν (0) s^{-1}	$\tau_{approx.}$
Mo 11	22,95	$1,94.10^{-4}$	$2,1.10^{-4}$	83 mn
	23,50	$5,0\ .10^{-4}$	-	33 mn
	24,00	$1,01.10^{-3}$	$8,8.10^{-4}$	17 mn
	24,61	$2,3\ .10^{-3}$	$2,4.10^{-3}$	7 mn
Mo 12	21,96	$3,52.10^{-5}$ $4,60.10^{-5}$	-	6 à 8 h
	22,20	-	$6,4.10^{-5}$	≅ 4 h 30
	22,93	$2,1\ .10^{-4}$ $3,4\ .10^{-4}$	-	80 mn
	24,61	$2,9\ .10^{-3}$	-	6 mn
Mo 10 (à partir des recuits, voir § IV.2.1)	22,95	-	$1,15.10^{-3}$?	-
	23,50	≅ $6\ .10^{-4}$	-	28 mn
	23,77	≅ $8\ .10^{-4}$	-	21 mn

relaxations directe et inverse. Nous y avons ajouté la valeur approximative de τ ainsi que les résultats peu précis obtenus à partir des courbes de recuit de Mo 10 (voir figure 41).

L'ensemble de ces résultats est reporté sur la figure 50 qui est le diagramme d'Arrhénius des fréquences ν. Nous en tirons pour Mo 11 et Mo 12 :

$$W = (72 \pm 3) \text{ meV}$$

et

$$\nu_o = 9.10^{(11 \pm 0,6)} \ s^{-1}$$

(les mesures sur Mo 10, fortement entachées d'erreur, ne sont pas en contradiction avec ces valeurs).

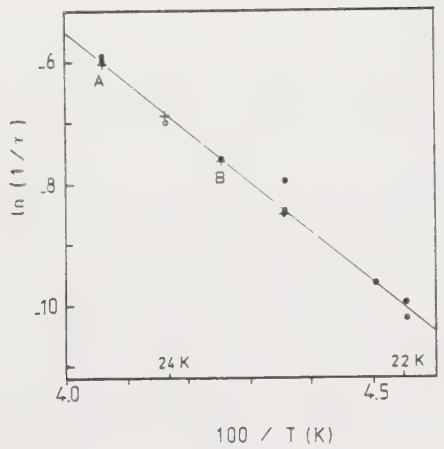


Figure 50 - Diagramme d'Arrhénius regroupant les résultats des relaxations de Mo 12 (points noirs) et des relaxations directes (croix) et inverses (disque blanc) de Mo 11. En A et B trois points sont superposés.

IV.3.3 - Amplitude de l'effet. Influence de la contrainte et de la température

Les relaxations observées qui disparaissent par recuit à ≅ 45 K, nous les attribuons à la réorientation sous contrainte, thermiquement activée, de défauts ponctuels. Nous développons un modèle cinétique simple pour décrire le phénomène au Chapitre V (§ V.1). L'amplitude y_∞ de l'effet à saturation (au bout d'un temps infini) dépend (dans ce modèle) d'une façon assez complexe de la contrainte et de la température, avec deux cas limites :

- y_∞ proportionnel à 1/T et à σ pour des populations de défauts faiblement réorientées ,
- y_∞ indépendant de 1/T et σ lorsque tous les défauts sont réorientés (donc avec une valeur de σ suffisamment élevée !).

Nous avons donc étudié l'influence de la température et de la contrainte sur l'amplitude à saturation en cherchant à faire varier le plus largement possible l'un et l'autre.

IV.3.3.1 - Evaluation de l'amplitude

Pour un phénomène aboutissant à une saturation et décrit par :

$$y = y_\infty \, (1 - \exp \, (- t \, / \tau)),$$

la façon idéale de procéder est d'attendre un temps infini et de mesurer la valeur y_∞ obtenue. Il suffit pour cela d'attendre pendant un temps long devant le temps de relaxation :

$$\tau = \tau_o \exp \, (W \, / \, kT).$$

Pour atteindre y_∞ à 5 % près il faut attendre un temps $t \cong 3 \, \tau$, et $t \cong 4{,}6 \, \tau$ pour 1 %. Mais ce qui est facile pour $\tau \cong 7$ mn (vers 24,6 K) devient difficilement

pratiquable pour $\tau \cong 4$ heures (à 22,4 K). Nous avons donc dû extrapoler les résultats pour obtenir la valeur à saturation aux basses températures. Lorsque la relaxation a pu être décrite par une exponentielle, nous utilisons directement la valeur y_∞ obtenue. Cependant, pour certaines relaxations, l'exponentielle ajustée sur le début de la courbe ne décrit pas bien sa partie finale (voir plus haut § IV.3.2) et nous avons alors utilisé une deuxième méthode d'évaluation de l'amplitude : on mesure la valeur des points expérimentaux y(t) pour des valeurs de t/τ connues et indépendantes de la température. Cette méthode suppose que l'on connaisse une valeur approchée de τ mais peut, dans ce cas, être appliquée même à une relaxation sur laquelle nous n'avons pas pu ajuster une exponentielle.

Enfin, il faut signaler que l'amplitude y_∞ ainsi obtenue n'est pas "universelle", car elle est la valeur limite de $\delta R/\delta R_{max}$ où δR_{max} est la résistance induite totale dans l'échantillon. Or le défaut produisant la relaxation n'est responsable que d'une fraction f de ce δR_{max}, fraction que nous ne connaissons pas avec précision, faute de recuits isochrones systématiques pour chaque expérience. Ce que nous savons, par contre, grâce à BIGET et al. / 30 /, c'est que cette fraction f et donc y_∞ dépendent très fortement et de l'orientation de l'échantillon et de l'énergie d'irradiation.

Dans la suite nous comparons les amplitudes obtenues au cours des expériences Mo 11 et Mo 12. Il s'agit dans les deux cas du même échantillon orienté de la même façon par rapport au faisceau d'électrons (à quelques degrés près) et irradié avec des électrons de la même énergie 1,5 MeV. Nous pouvons donc légitimement comparer les amplitudes pour les deux expériences.

IV.3.3.2 - Effet de la contrainte

La contrainte dite σ_{max} (donnée par le Tableau VII) utilisée pour la plupart des relaxations est effectivementla contrainte maximale admise par le montage. Nous n'avons donc pas pu aller au-delà et nous avons effectué des relaxations à contrainte moitié, comme le montrent les figures A10 et A14 de l'Annexe VI . La figure 51 représente l'amplitude $C = y_\infty$ en fonction de la contrainte pour les deux expériences Mo 11 et Mo 12 et pour des relaxations directe et inverse, toutes températures réunies (pour une relaxation inverse, sous contrainte nulle, la contrainte considérée est celle de la relaxation précédente). On y observe que :

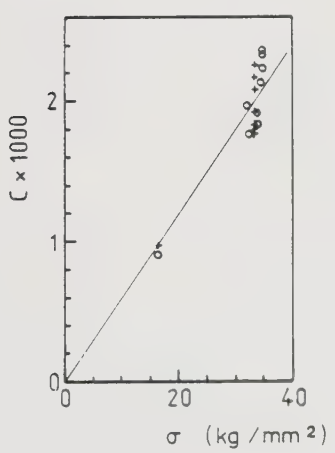


Figure 51 - Amplitude des relaxations Mo 11 (croix) et Mo 12 (cercles) déterminée par ajustement d'une exponentielle, en fonction de la contrainte appliquée.

1) l'amplitude est proportionnelle à la contrainte avec une valeur $y_\infty \cong 2.10^{-3}$ pour $\sigma = 35$ kg/mm².

2) l'amplitude est identique pour les deux expériences Mo 11 et Mo 12, à contrainte égale.

IV.3.3.3 - Effet de la température

Nous nous attendons à une augmentation (en 1/T) de l'amplitude aux basses températures et nous avons cherché à étendre au maximum le domaine de température. Nous sommes limités par la pression maximale d'hydrogène dans le cryostat pour les hautes températures (T = 24,61 K correspond à une pression de 3 bars sur les fenêtres d'irradiation), et par la durée des relaxations aux basses températures (la relaxation à 21,96 K a duré plus de 50 heures).

Sur la figure 52 nous avons porté, en fonction de 1/T, les amplitudes obtenues par ajustement d'exponentielles, normalisées par la contrainte, soit y_∞/σ (puisque d'après IV.3.3.2, l'amplitude est proportionnelle à la contrainte). Les relaxations ayant des durées très différentes (de 1 h à 50 h), nous avons aussi porté sur la figure 53, la valeur de y/σ pour $t/\tau \cong 2,6$ (avec E ≅ 72 meV et $\nu_o \cong 9.10^{11}$ sec^{-1}).

Pour les deux tracés, et dans le faible domaine de température étudié (de 21,96 K à 24,61 K) il n'apparaît pas de corrélation entre l'amplitude et la température.

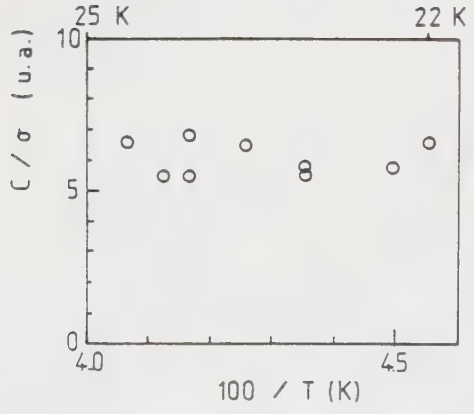


Figure 52 - Amplitude totale des relaxations en fonction de la température.

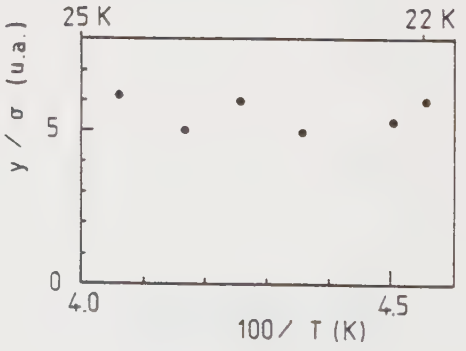


Figure 53 - Amplitude à t = 2,6 τ des relaxations en fonction de la température.

IV.4 - Discussion

Nous avons exposé dans IV.3 les diverses caractéristiques des phénomènes observés. Elles évoquent fortement une réorientation paraélastique de défauts d'irradiation. Nous examinerons donc d'abord en IV.4.1 l'orientation des défauts présents, puis nous chercherons en IV.4.2 l'origine de la variation de résistance des échantillons par laquelle la réorientation se manifeste. Enfin, nous comparerons nos expériences avec les autres résultats connus sur les défauts paraélastiques dans le molybdène (déjà exposés au IV.1) avant de conclure.

IV.4.1 - Orientation des défauts

Ainsi que nous l'avons montré dans la partie bibliographique du Chapitre III, les défauts présents dans nos échantillons après irradiation sont des paires de Frenkel isolées, dont l'interstitiel est dissocié suivant <110>. Le défaut le plus susceptible de se réorienter est alors l'haltère formée par l'interstitiel dissocié. Quelle que soit l'orientation de la contrainte les différentes directions <110> ne sont pas équivalentes vis-à-vis de cette contrainte externe et les haltères ont alors tendance à se réorienter. Examinons plus précisément le cas du monocristal sur lequel nous avons fait la quasi-totalité des expériences quantitatives (Mo 11 et Mo 12). Son orientation est donnée par la figure 54. Le faisceau d'électrons arrive suivant une direction <100>, direction pour laquelle, d'après BIGET et al. / 30 /, le déplacement est le plus facile (voir § III.1.1). La traction uniaxiale est exercée suivant une direction <110> que nous choisissons comme $[110]$. Trois situations différentes sont alors possibles pour l'interstitiel dissocié ; l'haltère peut être :

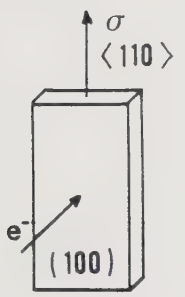


Figure 54

- parallèle à la contrainte ($[110]$),
- à 60° avec la contrainte ($[101]$, $[10\bar{1}]$, $[011]$, $[01\bar{1}]$),
- perpendiculaire à la contrainte ($[1\bar{1}0]$),

comme cela est schématisé ci-contre.

Pour les paires de Frenkel, la direction du vecteur lacune-interstitiel nous est suggérée par les résultats de BIGET et MAURY (voir § III.1.2) : il s'agirait de paires créées dans la direction <100> pour celles qui se guérissent au stade I_4, et de paires créées dans la direction <111> pour celles des stades I_2 et I_3.

IV.4.2 - Origine de la variation de résistance

La réorientation des défauts s'est manifestée dans nos expériences par une augmentation de la résistance électrique de l'échantillon. Or cette résistance est de la forme $R = \rho \frac{\ell}{s}$ (où ρ est la résistivité, ℓ la longueur de l'échantillon et s sa section). Son augmentation au cours de la relaxation peut être décomposée en :

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{\Delta \rho}{\rho} + \frac{\Delta (\ell/s)}{(\ell/s)}$$

soit

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{\Delta \rho}{\rho} + \left(\frac{\Delta R}{R}\right)_{géom.}$$

et peut donc provenir soit d'une variation de résistivité, soit d'un effet géométrique de déformation de l'échantillon au cours de la réorientation. Nous allons montrer que ce dernier terme est négligeable et que nous mesurons bien une variation de la résistivité. Le terme géométrique vaut :

$$\left(\frac{\Delta R}{R}\right)_{géom.} = \frac{\Delta \ell}{\ell} - \frac{\Delta s}{s} \cong 2 \frac{\Delta \ell}{\ell}$$

(si l'on suppose que le volume total ne varie pas, ce qui donne un majorant de l'effet). Nous avons plusieurs moyens d'évaluer ce dernier terme :

1) En écrivant que l'allongement dû aux défauts réorientés (qui forment une fraction f de la concentration initiale totale C_o des défauts) est en tout cas inférieur à leur concentration(*), soit :

$$\frac{\Delta \ell}{\ell} < C_o f ,$$

nous obtenons :

$$\left(\frac{\Delta R}{R}\right)_{géom.} < 2 C_o f < 2 C_o$$

(De plus, la fraction f doit être faible car l'amplitude de la variation de résistance résultant de la réorientation est proportionnelle à la contrainte appliquée - voir § IV.3.3.2 - et nous sommes donc loin de la saturation).

Pour une expérience typique (Mo 11 ou Mo 12) nous avons :

$$C_o \cong 2.10^{-4} \quad \text{et pour} \quad \sigma \cong 35 \text{ kg/mm}^2 , \qquad \frac{\Delta R}{\Delta R_{max}} \cong 2.10^{-3}$$

Or $\Delta R = R_o + \Delta R_{max}$ où ΔR_{max} est la résistance induite par irradiation et R_o la résistance résiduelle beaucoup plus faible, donc $\frac{\Delta R}{R}$ est à peu près égal

(*) Le cas $\Delta \ell / \ell = C_o f$ correspond au cas extrême où le basculement d'un interstitiel dans la direction de la traction uniaxiale s'accompagnerait d'un allongement d'une distance interatomique dans cette direction.

à $\frac{\Delta R}{\Delta R_{max}}$ et dans ce cas :

$$\left(\frac{\Delta R}{R}\right)_{géom.} < 4.10^{-4} << \frac{\Delta R}{R}$$

2) Nous pouvons aussi utiliser les résultats connus des expériences de trainage mécanique où le paramètre suivi au cours des réorientations est précisément la déformation de l'échantillon (mais sous tension). D'après les résultats de JACQUES et ROBROCK / 50 / obtenus dans des conditions semblables aux nôtres (irradiation aux électrons jusqu'à une concentration atomique de 3.10^{-4}) :

$$\frac{1}{C_o}\ \frac{\Delta\varepsilon}{\varepsilon_o} \cong (25 \text{ à } 30) \qquad \text{vers 26 K}$$

où ε_o est la déformation initiale imposée,
et $\Delta\varepsilon$ la valeur à saturation de la déformation paraélastique observée.

En appliquant directement à notre cas (traction) ces résultats de torsion, dans les conditions précédentes, nous obtenons :

$$\Delta\varepsilon \cong (6 \text{ ou } 7).10^{-6} \quad \text{et donc} \quad \left(\frac{\Delta R}{R}\right)_{géom.} \cong 2\ \Delta\varepsilon \cong 1{,}3.10^{-5}$$

L'effet géométrique issu des déformations mesurées par JACQUES et al. est donc trop faible de deux ordres de grandeur pour rendre compte de la variation de résistance électrique observée.

Le terme dominant dans $\frac{\Delta R}{\Delta R_{max}}$ est donc $\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_{max}}$

Ce que nous observons est donc une augmentation de la résistivité spécifique des défauts (mesurée dans la direction de la contrainte) au cours de la réorientation.

Si l'on admet (ce qui est le plus vraisemblable, ce qui est établi par les mesures de trainage mécanique et ce qui sera confirmé par les calculs de "lattice statics" du Chapitre V) que les haltères ont tendance à s'aligner avec la contrainte, donc dans notre cas avec le courant de mesure de la résistance, ceci signifie que leur résistivité est plus élevée lorsqu'elles sont parallèles au courant que lorsqu'elles sont perpendiculaires.

En conclusion :

1 - Nous mesurons l'anisotropie de résistivité du défaut qui se réoriente sous contrainte, probablement l'interstitiel dissocié.

2 - Cette résistivité est plus grande lorsque l'haltère est parallèle au courant de mesure que lorsqu'elle est perpendiculaire.

Ce résultat, un peu surprenant, n'est pas unique ; en effet, BERRY et al. / 53 / ont obtenu un résultat semblable dans un alliage dilué polycristallin Ta-O. Dans une matrice cubique centrée les atomes d'oxygène occupent des sites du type $(\frac{1}{2}, 0, 0)$ à égale distance de deux atomes de tantale dans la direction [100] . BERRY et al. ont montré, par des mesures dynamiques (calquées sur celles de frottement interne) que la résistivité de cet ensemble parallèlement à [100] est plus élevée que dans les autres directions.

IV.4.3 - Comparaison avec les résultats connus

Ainsi que nous l'avons exposé en IV.1, il existe sur les défauts para-élastiques dans le molybdène, des mesures de frottement interne et de trainage mécanique. Nous venons de montrer que la grandeur qui évolue au cours de nos expériences est la résistivité des défauts. Or les mesures de trainage mécanique permettent de mesurer la déformation des échantillons. Nous ne pouvons donc pas comparer les amplitudes de nos phénomènes. Par contre, si les effets observés (en allongement ou en résisitivité) correspondent au même processus, les énergies d'activation et les fréquences caractéristiques doivent être les mêmes. Avant de faire cette comparaison, deux remarques s'imposent :

- notre domaine de mesure est un peu décalé vers les basses températures par rapport aux expériences de trainage mécanique. Il est aussi plus réduit. Ceci nous amènera à faire des extrapolations pour comparer les résultats.

- les résultats de MIZUBAYASHI et al. / 51 / aux neutrons rapides et de JACQUES et al. / 50 / aux électrons, obtenus par la même technique de trainage mécanique sont différents (voir § IV.1.2). D'une part, JACQUES n'observe pas le pic à 8 K attribué par MIZUBAYASHI et al. à la rotation de l'interstitiel libre. D'autre part, si l'un et l'autre décomposent les phénomènes observés entre 22 et 28 K en quatre processus distincts, ces quatre relaxations ont des caractéristiques différentes (amplitude relative, temps caractéristique).

IV.4.3.1 - Comparaison avec les résultats de MIZUBAYASHI et al. / 51 / (neutrons rapides)

Les propriétés des quatre relaxations obtenues par MIZUBAYASHI figurent au Tableau XVII. L'une d'elles (dite "26 K") est nettement prépondérante. Ses temps caractéristiques τ concordent bien avec les nôtres comme le montre le Tableau XVII suivant :

TABLEAU XVII

T°K	23,50	23,8	24,8	24,61
(mn) MIZUBAYASHI	-	32	8,6	-
(mn) ce travail	33	-	-	6-7

Nous avons reporté nos résultats sur le diagramme d'Arrhénius de MIZUBAYASHI / 51 / (figure 55) et constatons un bon accord. La température à laquelle le défaut responsable de cette relaxation "26 K" disparaît (entre 32 K et 38 K) est aussi compatible avec notre mesure. Par contre, l'énergie d'activation obtenue par MIZUBAYASHI et OKUDA dans un large domaine de température (en utilisant des résultats de frottement interne - voir la figure 55) est : $E = (84 \pm 1)$ meV (et $\nu_o \cong 1{,}6.10^{14}\ s^{-1}$), résultat assez différent du nôtre : $E = (72 \pm 3)$ meV.

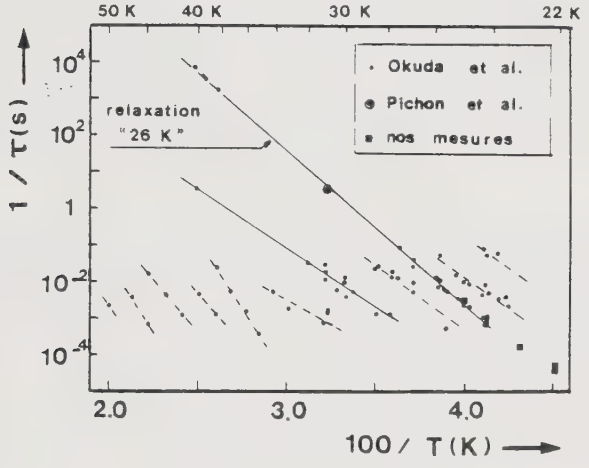


Figure 55

IV.4.3.2 - Comparaison avec les résultats de JACQUES et ROBROCK / 50 / (aux électrons)

Nous avons reporté nos résultats sur le diagramme d'Arrhénius de ces auteurs (figure 56) et nous observons :

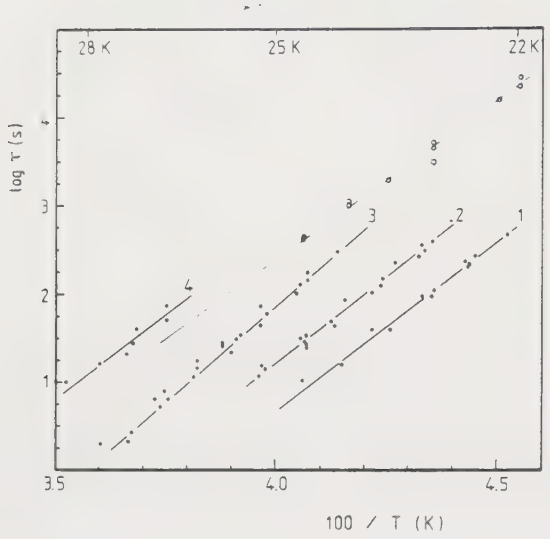


Figure 56 - Nos points expérimentaux (cercles) placés dans le diagramme d'Arrhénius de JACQUES et al. / 48 /.

- que nos domaines de mesure sont différents (τ et 1/T sont plus élevés dans notre cas) ; en effet, JACQUES effectue des mesures continues dans un temps court (environ 10 mn) et réciproquement nos mesures étant discontinues - avec au plus un point toutes les minutes environ - nous n'avons pas accès aux relaxations de faible τ.

- que nos points ne s'alignent pas sur une des quatre relaxations de JACQUES, mais se placent entr les relaxations 3 et 4 avec une pente plus faible : $E \cong (72 \pm 3)$ meV au lieu de $E \cong (90 \pm 18)$ meV.

Nos courbes sont en général bien décrites par une seule exponentielle. Toutefois, on peut se demander si nos résultats ne sont pas une sorte de "moyenne" entre les relaxations 3 et 4, mais dont l'une serait largement dominante. En effet, un même processus de relaxation peut avoir des conséquences très différentes sur l'allongement et sur la résistivité de l'échantillon. Les amplitudes relatives des relaxations 1, 2, 3 et 4, très voisines pour les expériences de trainage mécanique, pourraient être alors très différentes dans nos expériences.

Dans l'Annexe VII , nous étudions la décomposition possible de certaines de nos courbes en deux exponentielles à comparer aux relaxations 3 et 4 de JACQUES et al.

En conclusion :

- l'énergie d'activation que nous obtenons est du même ordre que celle déduite des expériences de trainage mécanique et de frottement interne (mais plus faible) ,
- notre relaxation est très comparable à la relaxation "26 K" de MIZUBAYASHI et OKUDA / 51 / ,
- elle ne peut pas, par contre, s'assimiler à l'une des quatre relaxations obtenues par JACQUES et al. / 50 /, mais se place entre les relaxations 3 et 4.

IV.5 - Conclusions

Nous avons mis en évidence la réorientation paraélastique d'un défaut d'irradiation dans le molybdène, par mesure de la résistance électrique de l'échantillon en fonction du temps, ce qui constitue une technique originale par rapport aux méthodes habituelles de trainage mécanique et de frottement interne. Cette réorientation est caractérisée par :

$$E \cong (72 \pm 3) \text{ meV}$$
$$\nu_o \cong 9.10^{(11\pm0,6)} \text{ s}^{-1}$$

Si notre technique de mesure a l'inconvénient de nécessiter une température très stable (car la résistivité de phonons varie en $T^{4,5}$ à ces températures), elle donne par contre des renseignements sur la résistivité spécifique des défauts (qui est bien le paramètre dont nous mesurons l'évolution lorsque la résistance varie).

L'haltère formé par l'interstitiel dissocié est très probablement le défaut qui se réoriente dans nos expériences. Nous avons montré que cet haltère a une résistivité anisotrope. Désignons par $\rho_{//}$ la résistivité de l'haltère mesurée parallèlement à son axe et $\rho_{\perp}$ la résistivité mesurée perpendiculairement à cet axe. Nos résultats montrent que $\rho_{//}$ est supérieure à $\rho_{\perp}$, à la seule condition que l'interstitiel dissocié soit plus stable lorsqu'il s'aligne avec la contrainte que lorsqu'il lui est perpendiculaire.

C'est pour vérifier cette dernière hypothèse et déterminer des cinétiques de réorientation, que nous avons développé plusieurs modèles décrits au Chapitre suivant.

Il nous manque, par contre, un paramètre important. Dans l'état actuel des expériences nous ne pouvons pas mesurer l'anisotropie de résistivité de l'haltère. En effet, faute d'avoir fait des recuits détaillés entre 28 et 35 K, nous ne savons pas quelle proportion de défauts participe à cette relaxation. Il nous manque de plus le degré de réorientation des haltères concernés (dont un modèle du type du modèle cinétique du Chapitre V pourrait donner une valeur approchée).

CHAPITRE V

MODELE DE DESCRIPTION DES RELAXATIONS

V.1 - ENERGIES DE CONFIGURATION DES DÉFAUTS

V.1.1 - Principe du calcul

V.1.2 - Hypothèses

V.1.3 - Résultats

V.2 - MODÈLE CINÉTIQUE

V.2.1 - Hypothèses du modèle

V.2.2 - Principales caractéristiques

V.2.3 - Comparaison avec l'expérience

V.3 - CONCLUSION

Nous avons cherché à décrire l'effet de la contrainte sur les défauts que nous avons créés par irradiation :

- l'effet instantané par un calcul d'énergies de configuration des défauts sous contrainte (et sans) ,
- et la cinétique de la réorientation par un modèle simple.

Nous exposons dans ce chapitre les résultats de ces divers calculs et nous les confrontons aux expériences.

Le calcul d'énergies de configuration du type "lattice statics", effectué sur les ordinateurs du CIRCE à Orsay, est assez complexe. Nous en donnons ici simplement le principe et les résultats essentiels. Les détails du calcul et des résultats sont développés au Chapitre VI.

V.1 - Energies de configuration des défauts

V.1.1 - Principe du calcul

Ce calcul, fait en collaboration avec F. MAURY, est fortement inspiré de celui qui lui a permis de comparer des énergies de paires lacune-interstitiel dissocié avec différentes directions de dissociation / 35 / (nous avons évoqué ces résultats en III.1.1). Nous partons d'un petit cristal parfait de quelques centaines d'atomes. Nous pouvons éventuellement lui "appliquer une contrainte uniaxiale" d'amplitude σ et de direction $\vec{K}$: nous déformons pour cela tout le cristal suivant les lois de l'élasticité linéaire (avec les coefficients C_{11}, C_{12}, C_{44}). Puis nous définissons un potentiel de paires entre deux atomes, potentiel de faible portée. Par sommation de toutes les énergies de paires, nous obtenons une énergie du cristal E_o. Nous plaçons alors un défaut au centre du cristal (en général un interstitiel dissocié suivant [110]). Nous calculons la nouvelle énergie du cristal et les forces s'exerçant sur chaque atome de ce cristal, puis nous déplaçons simultanément tous les atomes (sauf ceux des frontières du microcristal). Nous répétons cette opération (calcul des forces puis déplacement) jusqu'à atteindre l'équilibre. L'énergie est alors stabilisée à une valeur E_d. La comparaison de cette énergie E_d du cristal contenant un défaut avec celle E_o du cristal parfait nous donne, à quelques corrections près, l'énergie de configuration du défaut considéré. Ce calcul peut être mené sous (ou sans) contrainte ; son principe est expliqué de façon moins succincte en VI.1

V.1.2 - Hypothèses

Nous avons étudié le cas d'un interstitiel dissocié suivant la direction $\vec{D}$ [110] . La contrainte extérieure, de direction <110> comme dans nos expériences, peut prendre trois types d'orientation :

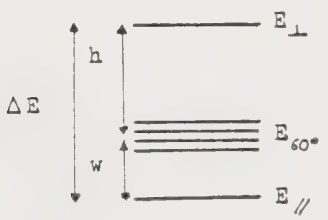
- suivant [110] elle est parallèle à $\vec{D}$
- suivant [10$\bar{1}$] elle est à 60° avec $\vec{D}$
- suivant [1$\bar{1}$0] elle est perpendiculaire à $\vec{D}$

Nous avons utilisé plusieurs potentiels interatomiques assez différents, et fait varier l'amplitude de la contrainte de 0 à 200 kg/mm^2 environ (avec un grand nombre de calculs pour $\sigma \cong 30$ kg/mm^2, ce qui se rapproche des valeurs expérimentales).

V.1.3 - Résultats

Les résultats suivants sont qualitativement les mêmes pour tous les potentiels :

1 - la contrainte sépare les niveaux d'énergie des six types d'interstitiels (correspondant aux six orientations <110> possibles, par rapport à la contrainte [110]) suivant le schéma ci-contre. L'interstitiel parallèle à la contrainte est le plus stable, l'interstitiel perpendiculaire le moins stable et les quatre interstitiels à 60° avec la contrainte occupent une situation intermédiaire.



2 - ce niveau intermédiaire se situe environ au tiers inférieur, c'est-à-dire que l'on a : $w / (h + w) \cong 1/3$.

3 - l'écart maximum en énergie $\Delta E = E_{\perp} - E_{//} = h + w$ est proportionnel à la contrainte au moins jusqu'à $\sigma = 100$ kg/mm^2 (voir la figure 57).

4 - cet écart ΔE dépend assez fortement du potentiel choisi mais reste de l'ordre de quelques dizaines de meV pour la contrainte la plus proche de la valeur expérimentale, soit $\sigma \cong 30$ kg/mm^2 (de 10 meV à 46 meV).

L'ensemble des résultats est détaillé au Chapitre VI.

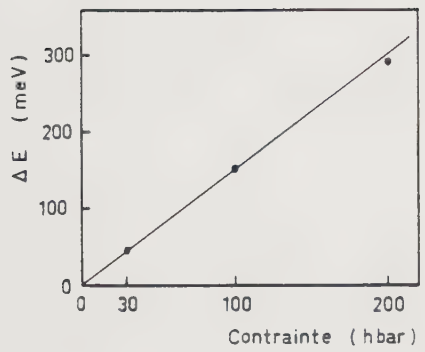


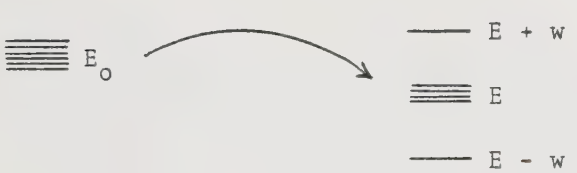
Figure 57 - Ecart d'énergie ΔE entre les configurations perpendiculaire et parallèle à la contrainte, en fonction de celle-ci.

V.2 - MODÈLE CINÉTIQUE

En partant des résultats précédents, nous allons chercher à évaluer une cinétique d'orientation sous contrainte pour des haltères dirigés suivant <110> et soumis à une contrainte de direction [110].

Pour alléger les calculs nous supposons que les écarts d'énergie entre le niveau intermédiaire et les niveaux extrêmes sont égaux (w = h). Comme nous l'avons vu, ils sont en fait dans un rapport h/w ≅ 2, mais cette hypothèse simplifie les calculs, et ne modifie guère les résultats (voir Annexe VIII).

V.2.1 - Hypothèses du modèle



Configuration	Population
(X)	X
(Y)	Y
(Z)	Z

Partons de la répartition en énergie obtenue en V.1.3 (mais avec h = w). Nous avons :

- un niveau haut E + w pour la configuration (X) perpendiculaire à la contrainte $\vec{\sigma}$,

- un niveau intermédiaire E pour les quatre configurations (Y) à 60° avec $\vec{\sigma}$,
- un niveau bas E - w pour la configuration (Z) parallèle à $\vec{\sigma}$.

Nous désignons par X, Y et Z les populations respectives de ces trois niveaux (initialement $X_o = Z_o = \frac{N}{6}$ et $Y_o = \frac{4N}{6}$, N étant le nombre total d'interstitiels).

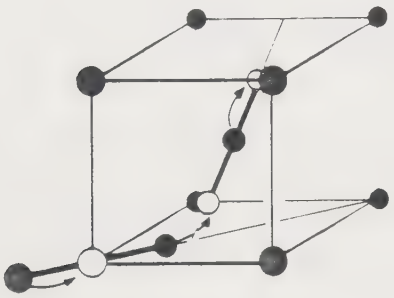


Figure 58 - Saut d'un interstitiel d'un site à un site voisin dans un cristal cubique centré (ici le fer α) d'après R.A. JOHNSON / 54 /. L'haltère, de direction supposée <110>, passe d'une configuration (Z) à (Y). Le prochain saut lui permettrait d'atteindre (X).

Nous supposons que la réorientation des "haltères" se fait par saut des interstitiels d'un site à un site voisin. Plus précisément, en utilisant les résultats des calculs de R.A. JOHNSON / 55 / pour le fer α, nous admettons que les seuls sauts possibles sont les sauts obliques décrits par la figure 58 .

D'après ces résultats, l'interstitiel [110] peut sauter de huit façons différentes (2 par cube et dans 4 cubes possibles). Il atteint ainsi les directions [011] , [101] , [01$\bar{1}$] , [10$\bar{1}$] , [0$\bar{1}$1] , [$\bar{1}$01] , [0$\bar{1}\bar{1}$] , [$\bar{1}$0$\bar{1}$] , soit au total quatre directions différentes, chacune deux fois.

On en déduit :

- qu'un interstitiel X (ou Z) se transforme par saut en un interstitiel Y, et ce de huit façons différentes ,
- qu'un interstitiel Y se transforme soit en X, soit en Z, de deux façons dans les deux cas.

Ces sauts d'un site à un site voisin se font avec une fréquence ν que nous considérons comme thermiquement activée. Au premier ordre, les énergies d'activation sont $H \pm w$ (voir la figure 59), H étant l'énergie de migration de l'interstitiel à contrainte nulle. Nous avons pour cela un argument expérimental : en effet en faisant varier la contrainte du simple au double nous avons constaté (Chapitre IV.3.3 et Annexe VI , figures A10 et A14) que la constante de temps τ^{-1} de la relaxation, qui est proportionnelle

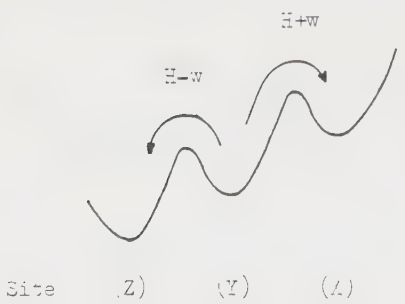


Figure 59

à ν, est bien indépendante de la contrainte (à la précision de nos expériences).

Les équations de la réorientation sont alors :

$$(1)\quad \begin{cases} \dfrac{dX}{dt} = -8\,\nu\, e^{w/kT}\, X + 2\,\nu\, e^{-w/kT}\, Y \\ \dfrac{dY}{dt} = 8\,\nu\, e^{w/kT}\, X - 2\,\nu\,(e^{-w/kT} + e^{w/kT})\, Y + 8\,\nu\, e^{-w/kT}\, Z \\ \dfrac{dZ}{dt} = 2\,\nu\, e^{w/kT}\, Y - 8\,\nu\, e^{-w/kT}\, Z \end{cases}$$

avec $X + Y + Z = N$

et $\nu = \nu_o\, e^{-H/kT}$

V.2.2 - Principales caractéristiques

Nous posons : $K = 2\,\nu$

$e^{\pm} = e^{\pm w/kT}$

$\dot{X} = \dfrac{dX}{dt}$, ...

(1) devient :

$$(2)\quad \begin{cases} \dfrac{1}{K}\,\dot{X} = -4\, e^{+}\, X + e^{-}\, Y \\ \dfrac{1}{K}\,\dot{Y} = 4\, e^{+}\, X - (e^{+} + e^{-})\, Y + 4\, e^{-}\, Z \\ \dfrac{1}{K}\,\dot{Z} = e^{+}\, Y - 4\, e^{-}\, Z \end{cases}$$

Ce système d'équations linéaires peut être résolu exactement, et donne alors pour X, Y et Z des combinaisons linéaires de deux exponentielles compliquées (voir Annexe VIII).

Nous pouvons toutefois, sans cette résolution, tirer du système d'équations (2) quelques caractéristiques de la cinétique :

i) initialement : au temps t = 0 (application de la contrainte) on a :

$$X_o = Z_o = \frac{N}{6} \quad \text{et} \quad Y_o = \frac{4N}{6}$$

soit

$$\left|\begin{array}{l} \frac{1}{K}\dot{X}_o = -\frac{2N}{3}(e^+ - e^-) \\ \frac{1}{K}\dot{Y}_o = 0 \\ \frac{1}{K}\dot{Z}_o = \frac{2N}{3}(e^+ - e^-) \end{array}\right.$$

donc $\dot{Y}_o = 0$ et $\dot{Z}_o = -\dot{X}_o$ ($\dot{Z}_o$ étant positif).

La courbure initiale de Y est $\ddot{Y}_o = (4\, e^+ \dot{X}_o + 4\, e^- \dot{Z}_o)\, K$,

soit $\frac{1}{K^2}\ddot{Y}_o = -\frac{8N}{3}(e^+ - e^-)^2$; elle est donc négative.

Si l'on désigne par $\rho_{//}$ (resp. $\rho_\perp$) la résistivité spécifique d'un haltère parallèle (resp. perpendiculaire) à la direction du courant, qui est celle de la contrainte, on obtient :

$$\rho_o = K\,(\rho_{//} - \rho_\perp) \cdot \frac{2N}{3}(e^+ - e^-)$$

La pente initiale de la variation de résistivité observée doit être alors :

- du signe de $\rho_{//} - \rho_\perp$, et proportionnelle à cette anisotropie de résistivité ,
- proportionnelle à $e^+ - e^-$, c'est-à-dire à w si $\varepsilon = \frac{w}{kT} << 1$ et à $e^{w/kT}$ si $\varepsilon > 1$.

ii) au bout d'un temps infini : on atteint un équilibre pour $\dot{X} = \dot{Y} = \dot{Z} = 0$.

Le système d'équations (2) donne alors :

$$\left.\begin{array}{l} 4\, e^+ X = e^- Y \\ 4\, e^- Z = e^+ Y \end{array}\right\} \Longrightarrow \left\{\begin{array}{l} X = e^{-2}\, Y/4 \\ Z = e^{+2}\, Y/4 \end{array}\right.$$

avec $X + Y + Z = N$, soit

$$X_\infty = \frac{N}{D} \times e^{-2} \qquad Y_\infty = \frac{N}{D} \times 4 \qquad \text{et} \qquad Z_\infty = \frac{N}{D} \times e^{+2}$$

où $D = 4 + e^{+2} + e^{-2}$.

X a diminué tandis que Z a augmenté, comme c'était prévisible. Pour Y, on a :

$$Y_\infty - Y_o = \frac{4N}{6D}(6 - 4 - e^{+2} - e^{-2})$$

d'où $Y_\infty - Y_o = -\frac{2N}{3D}\, e^{-2}\, (e^{+2}-1)^2$, et donc Y a diminué comme le laissait prévoir sa courbure initiale négative.

La résistivité à l'infini (valeur de saturation observée) vaut :

$$\rho_\infty = X_\infty \rho_\perp + Y_\infty \rho_{60} + Z_\infty \rho_{//}$$

soit $$\rho_\infty = \frac{N}{D} (4 \rho_{60} + e^{+2} \rho_{//} + e^{-2} \rho_\perp)$$

On peut préciser davantage dans les deux cas limites :

$$\varepsilon = \frac{w}{kT} \ll 1 \qquad \text{et} \qquad \varepsilon \gg 1 :$$

1 - $\varepsilon \ll 1$: (pratiquement $w < 0{,}4$ me V pour $T = 24$ K)

alors
$$\left| \begin{array}{l} X_\infty \cong \frac{N}{6} (1 - 2\varepsilon) \\ Y_\infty \cong \frac{2N}{3} (1 + 0(\varepsilon^2)) \\ Z_\infty \cong \frac{N}{6} (1 + 2\varepsilon) \end{array} \right.$$

ce qui donne pour la résistivité :

$$\frac{\rho_\infty - \rho_o}{\rho_o} \cong 2\varepsilon \cdot \frac{\rho_{//} - \rho_\perp}{\rho_o} ,$$

donc une valeur à saturation proportionnelle à w et inversement proportionnelle à T.

2 - $\varepsilon \gg 1$: (soit $w > 5$ meV pour $T = 24$ K)

Dans ce cas : $X_\infty = Y_\infty = 0$ et $Z_\infty = N$

Pour la résistivité, on obtient :

$$\rho_\infty = N \rho_{//} \qquad \text{et} \qquad \frac{\rho_\infty - \rho_o}{\rho_o} = \frac{N}{6\rho_o} (\rho_{//} - \rho_\perp) + 4 (\rho_{//} - \rho_{60})$$

où interviennent pour une large part les configurations "moyennes" à 60° avec la contrainte.

L'évolution des populations de défauts dans les deux cas limites est schématisée sur la figure 60.

REMARQUE IMPORTANTE :

Pour $\varepsilon << 1$, on vérifie (Annexe VIII) que les populations X et Z prennent la forme d'une seule exponentielle :

$$X = X_\infty (1 - e^{-at})$$

$$Z = Z_\infty (1 - e^{-at})$$

Y restant pratiquement constant. Pour la résistivité, on obtient alors :

$$\rho(t) - \rho_o = (\rho_\infty - \rho_o)(1 - e^{-at})$$

qui est la forme des courbes expérimentales obtenues au Chapitre IV.

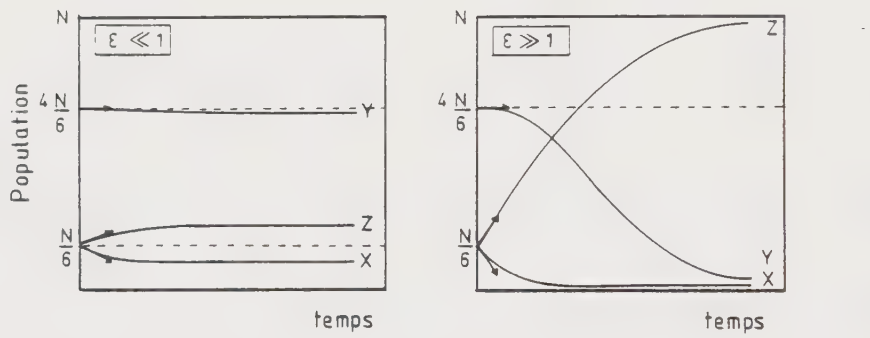


Figure 60 - Population des configurations (X), (Y), (Z), en fonction du temps.

iii) expérience inverse : Partons d'un état saturé et supprimons la contrainte. Les équations de l'évolution sont celles du système (2) mais avec w = 0 soit $e^+ = e^- = 1$.

Pour $\varepsilon << 1$, on a :

$$\frac{1}{K}\dot{X}_o = -4X_\infty + Y_\infty \cong +\frac{4N}{3}\varepsilon$$

et

$$\frac{1}{K}\dot{Z}_o = -4Z_\infty + Y_\infty \cong -\frac{4N}{3}\varepsilon$$

on retrouve donc, à l'instant t = 0 où l'on supprime la contrainte, $\dot{X}_o = -\dot{Z}_o$; ces pentes initiales sont les mêmes que lorsqu'on applique la contrainte (au signe près).

Ces deux résultats ($\dot{X}_o = - \dot{Z}_o$ et réversibilité du phénomène) ne sont plus vérifiés lorsque ε est grand.

iv) constantes de temps : La résolution du système (2) conduit à des combinaisons linéaires de deux exponentielles de la forme e^{-at} (voir Annexe IX). Ces constantes a ont la forme suivante :

$$\frac{1}{K} a_{\pm} = + \frac{5}{2} (e^{+} + e^{-}) \pm \frac{1}{2} \sqrt{9 (e^{+2} + e^{-2}) - 14}$$

ce qui donne pour les deux cas limites :

- pour $\varepsilon << 1$:
$$a_+ \cong + 6 K$$
$$a_- \cong + 4 K$$

- pour $\varepsilon >> 1$:
$$a_- \cong + K e^{+}$$
$$a_+ \cong + 4 K e^{+}$$

D'autre part, l'écart relatif des deux constantes de temps est donné par $\frac{a_+ - a_-}{a_-}$ qui varie entre 0,3 et 3 lorsque w passe de 0 à l'infini.

Pour simplifier les calculs, nous avons supposé que les écarts en énergie créés par la contrainte entre le niveau intermédiaire et les niveaux haut et bas, soit w, sont égaux. Comme le montre l'Annexe IX, les résultats principaux du modèle résumés par les points 1 à 3 du paragraphe suivant ne sont que peu modifiés si ces écarts sont différents tout en restant du même ordre de grandeur (c'est-à-dire simultanément petits - ou grands - devant kT. Il suffit de remplacer dans les points 1 à 3 "proportionnel à w" par "proportionnel à la contrainte" en admettant que les écarts ΔE (Y,Z) et ΔE (Y,X) sont tous deux proportionnels à σ.

V.2.3 - Comparaison avec l'expérience

Les résultats principaux du modèle précédent concernent :

1 - les pentes initiales des courbes de relaxation, qui sont proportionnelles à $\rho_{//} - \rho_{\perp}$ et à $e^{+} - e^{-}$ (donc à w si w/kT est petit).

2 - les valeurs atteintes à saturation qui sont :

. proportionnelles à w si $\frac{w}{kT}$ est petit ,

. indépendantes de w si $\frac{w}{kT}$ est grand (car alors tous les haltères sont réorientés).

3 - la comparaison des pentes initiales lorsqu'on applique ou que l'on supprime la contrainte. Ces pentes sont identiques (et opposées) lorsque $\frac{w}{kT}$ est petit, mais différentes si $\frac{w}{kT}$ est grand.

4 - enfin, la forme des courbes, combinaison de deux exponentielles de constantes de temps assez différentes et proportionnelles à $K = 2\nu$, qui se réduit lorsque w/kT est petit à une seule exponentielle de constante de temps $\tau^{-1} \cong 4\ K$.

Pour comparer directement ces quatre points à l'expérience, il nous faudrait la valeur de w que nous n'avons pas. Cependant, la contrainte σ que nous appliquons n'introduit qu'une faible perturbation du réseau (des déformations de l'ordre de 10^{-4} à 10^{-3} des distances interatomiques) et nous avons montré que l'écart en énergie w est proportionnel à cette contrainte $\vec{\sigma}$ sur laquelle nous pouvons agir pendant l'expérience. La linéarité en w est alors équivalente à la linéarité en $\vec{\sigma}$.

Or expérimentalement nous observons sur nos courbes :

- une pente initiale proportionnelle à la contrainte (voir la figure A10 de l'Annexe VI) ,
- des valeurs à saturation proportionnelles à la contrainte (figure A14 de l'Annexe VI) ,
- des pentes initiales égales et opposées pour les relaxations directe et inverse (figure 47) ,
- des courbes qui peuvent être décrites en général par une seule exponentielle (figure 47). (On admet, comme pour le trainage mécanique, que lorsque l'on a besoin de deux exponentielles, c'est qu'il y a deux processus en jeu).

Donc toutes les caractéristiques (1 à 4) du modèle ci-dessus, décrivent bien l'expérience mais seulement si w/kT est petit. En pratique, compte tenu de la précision de nos expériences, cela équivaut à écrire $w < 3$ meV. Le calcul d'énergie de configuration donne des valeurs de w un peu plus élevées (en moyenne 10 meV) mais dans lesquelles nous avons une confiance modérée car (voir Chapitre VI) :

- w dépend très fortement du potentiel choisi,
- l'énergie de configuration de l'interstitiel dont dérive w est certainement surestimée à cause de la taille du microcristal (voir la figure 68 du Chapitre VI).

Le modèle cinétique nous pousse alors à conclure que w est inférieur à 3 meV.

En conclusion, le modèle cinétique simple développé ici permet de bien décrire la cinétique de nos phénomènes de relaxation, à condition que l'écart d'énergie w soit inférieur à 3 meV.

V.3 - Conclusion

Le calcul d'énergies de configuration,quel que soit le potentiel utilisé, a confirmé, ce qui était intuitif, que la contrainte extérieure sépare les haltères en trois niveaux d'énergie suivant leur direction, et que l'haltère parallèle à la traction est le plus stable. L'écart d'énergie créé entre deux niveaux est proportionnel à la contrainte. Sa valeur est très sensible au choix du potentiel et un peu à la taille du cristal utilisé pour le calcul ; elle est donc peu sûre.

Le modèle cinétique développé à partir du schéma précédent a permis de bien reproduire les résultats expérimentaux, à condition que les écarts d'énergie créés par la contrainte soient faibles (un peu inférieurs à ceux que nous avons obtenus par le calcul d'énergies). Grâce à ce modèle nous avons justifié a posteriori l'utilisation d'exponentielles pour le dépouillement des courbes de relaxation. Nous avons aussi pu tenter de tester sur nos résultats quelques autres conclusions du modèle (proportionnalité de l'amplitude totale à la contrainte, à l'inverse de la température).

CHAPITRE VI

CALCUL DE TYPE "LATTICE STATICS" D'ENERGIES DE CONFIGURATION

VI.1 - PRINCIPE

VI.1.1 - Principe du calcul

VI.1.2 - Définition du cristal

VI.1.3 - Nature du potentiel

VI.1.4 - Potentiels utilisés

VI.1.5 - Déformation du réseau

VI.2 - RÉSULTATS

VI.2.1 - Dépouillement des résultats

VI.2.2 - Conditions du calcul

VI.2.3 - Résultats

VI.2.3.1 - Energie de configuration de l'interstitiel

VI.2.3.2 - Séparation des niveaux par la contrainte

VI.2.3.3 - Effet de l'amplitude de la contrainte

VI.2.3.4 - Déplacement des niveaux

VI.2.4 - Influence des conditions du calcul

VI.2.4.1 - Présence de la lacune

VI.2.4.2 - Dimension du cristal

VI.2.4.3 - Potentiel

VI.3 - CONCLUSION

VI.1 - PRINCIPE

Nous souhaitons connaître l'effet de la déformation élastique sur les énergies de configuration des interstitiels.

Nous avons donc calculé les énergies de différentes configurations interstitiel dissocié-contrainte et ce pour des contraintes d'amplitude variable. Nous obtenons alors :

- pour une contrainte donnée, les niveaux d'énergie que nous cherchons,
- pour une configuration fixée, l'influence de la contrainte.

Nous avons utilisé pour cela un calcul de type "lattice statics" que nous décrivons dans la suite.

VI.1.1 - Principe du calcul

Nous avons effectué nos calculs d'énergie de configuration de paires de Frenkel et d'interstitiels dissociés sous contrainte en modifiant un peu le programme écrit par Françoise MAURY pour des réseaux non déformés.

Le principe du calcul est donc le même que celui exposé dans / 35 /.

Nous partons d'un petit cristal parallélépipédique dont les arêtes sont des directions <100>. Les trois dimensions a, b, c du cristal sont choisies en fonction de la nature du défaut que nous introduisons, de façon que le défaut soit suffisamment éloigné des frontières du cristal (une paire de Frenkel demandera un cristal allongé dans une direction, un défaut isolé - interstitiel ou lacune - correspondra à un cube).

Nous définissons un potentiel central de paires entre les atomes du cristal. Ce potentiel, de type empirique, est schématisé en figure 62 en VI.1.2 ; il comprend une partie répulsive, proche d'un potentiel de Born-Mayer et une partie attractive de forme empirique reproduisant les constantes élastiques du cristal. Ce potentiel est à faible portée (inférieure à 1,2 fois la maille du cristal).

Le cristal initial est alors divisé en deux parties :

- une couche extérieure, dont l'épaisseur est supérieure à la portée du potentiel, d'atomes qui ne peuvent pas se déplacer,
- un parallélépipède intérieur, ou volume de relaxation, dont les atomes sont autorisés à se déplacer.

Enfin, notre monocristal est supposé être "découpé" dans un cristal infini dont l'effet est simulé par la pression de Cauchy $p = \frac{1}{2}(C_{12}-C_{44})$. Ceci permet de rétablir l'équivalence entre les atomes de "surface" du monocristal et les atomes du centre (et donc de maintenir pour le cristal parfait le bon paramètre partout).

Le principe du calcul est alors de placer à un instant t = 0 un défaut au centre du cristal et de laisser le cristal relaxer jusqu'à l'équilibre (les atomes hors du volume de relaxation restant fixes).

La différence entre l'énergie de configuration d'équilibre du cristal avec défaut et celle du cristal parfait (corrigée du nombre total d'atomes du cristal lorsque la présence du défaut le modifie) donne une énergie de configuration du défaut.

Le schéma du calcul est le suivant :

1°- Le cristal parfait est soumis à une contrainte uniaxiale d'amplitude σ et de direction $\vec{K}$ (les déformations correspondantes sont calculées par l'élasticité linéaire).

2°- Au temps t = 0, on introduit le défaut choisi au centre du cristal.

3°- Un petit intervalle de temps dt étant choisi, on calcule pour chaque atome i du volume de relaxation :

- la force $\vec{f}_i(t)$ exercée sur lui par ses voisins,
- l'énergie $E_i(t)$ des paires formées avec cet atome (la demi-somme de ces énergies sur tous les atomes i donne l'énergie totale du volume de relaxation),
- la vitesse acquise par cet atome dans l'intervalle dt :

$$\vec{v}_i\ (t + dt) = \vec{v}_i(t) + \frac{\vec{f}_i(t)}{m}\ dt$$

où m est la masse de l'atome.

4°- On imprime la position des atomes de l'haltère et l'énergie totale du volume de relaxation.

5°- A l'instant t + dt, on déplace l'ensemble des atomes suivant :

$$\vec{dr}_i(t) = \vec{v}_i\ (t + dt)\ .\ dt$$

6°- Si le nombre total de pas N est inférieur à la borne fixée B, on retourne en 3° pour un pas supplémentaire.

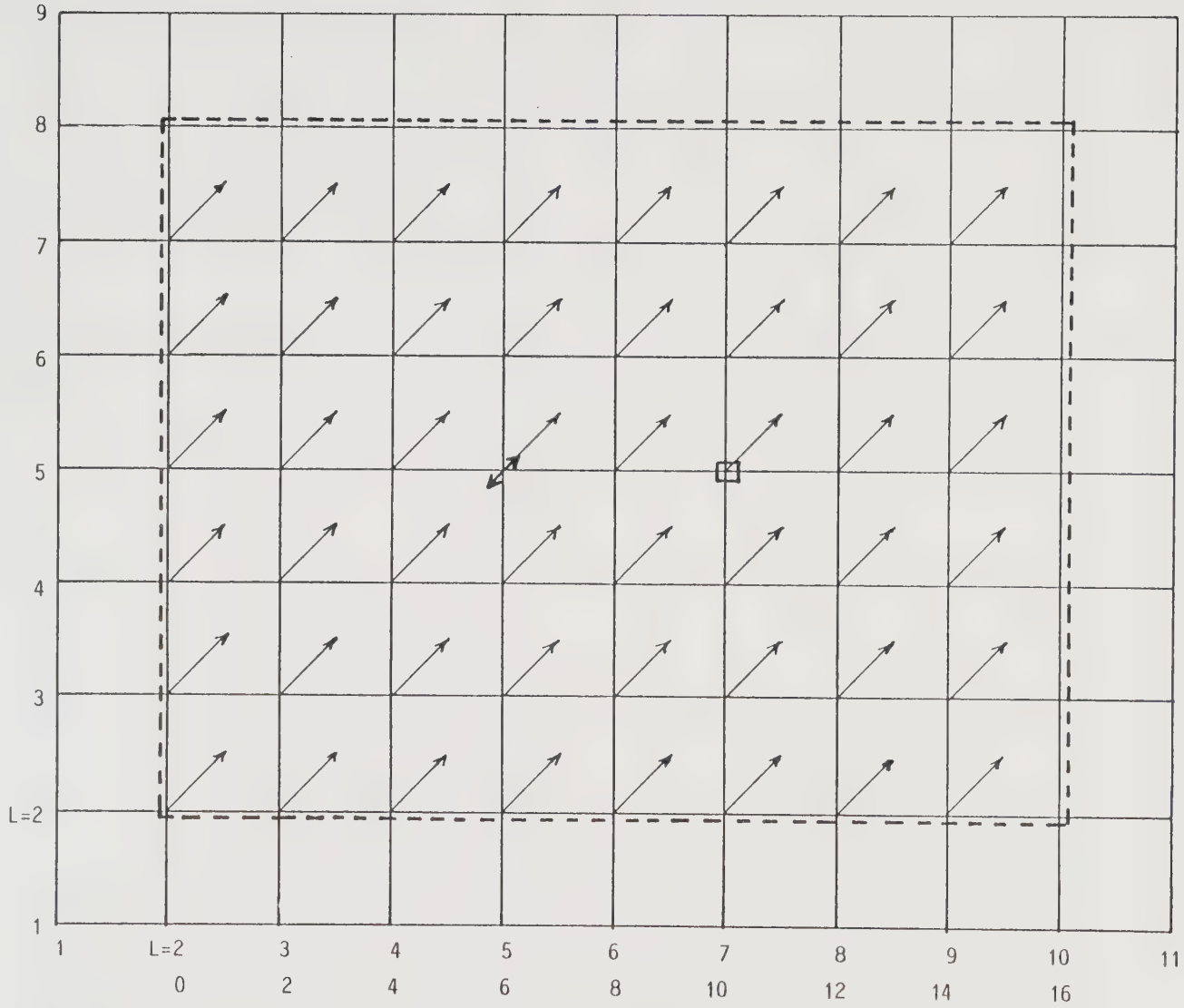
7°- Si le processus de relaxation est terminé (N = B) on imprime les positions d'un certain nombre d'atomes (par exemple la diagonale du cube).

L'impression systématique à chaque pas (en 4°) de l'énergie totale permet de vérifier qu'à la fin du calcul l'équilibre est bien atteint, l'énergie s'étant stabilisée à une valeur minimum.

VI.1.2 - Définition du cristal

Les cristaux utilisés sont :

- des cubes lorsque le défaut est un interstitiel,
- des parallélépipèdes allongés dans une direction lorsqu'il s'agit d'une paire de Frenkel (a = b et c > a).



Volume de relaxation :
16, 12, 12

Coordonnées lacune :
10, 6, 6

Coordonnées interstitiel
6, 6, 6

En tiret le volume de relaxation, désignés par les flèches les atomes du plan Z = 7.

Figure 61 : Plan Z = 6 contenant la paire 400.

La dimension des cristaux est caractérisée par les trois indices (N, M, P) donnant le nombre de demi-mailles du volume de relaxation dans chaque direction <100>, <010>, <001>.

L'origine des coordonnées des atomes est un coin du volume de relaxation et l'unité des coordonnées est le demi-paramètre a (le paramètre du molybdène est 2 a = 3,15 Å). Les atomes sont repérés par des indices I, J, K, L où :

- I, J et K définissent la maille,
- et L la position de l'atome dans la maille (origine ou centre).

La figure 61 représentant une paire de Frenkel dans le plan z = 6 d'un cristal (16, 12, 12) résume ces définitions.

VI.1.3 - Nature du potentiel

Nous avons utilisé plusieurs potentiels inspirés de ceux de F. MAURY / 35 / et de KENNY et al. / 36 /.

Ces potentiels sont des potentiels centraux, de courte portée (s'étendant seulement aux 2ème voisins) et de forme polynomiale :

$$V(r) = A\left(\frac{r}{a}\right)^3 + B\left(\frac{r}{a}\right)^2 + C\left(\frac{r}{a}\right) + D \ ,$$

tronqués pour $r > r_E \cong 2{,}4\ a$ (où a est le demi-paramètre).

Ils sont divisés en trois régions correspondant à différentes valeurs des coefficients A, B, C, D (voir la figure 62 qui représente le potentiel II)

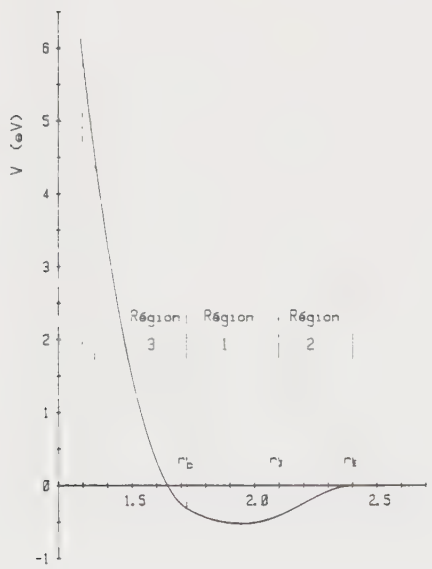


Figure 62 - Potentiel interatomique (n° II).

- une région moyenne dite (1) : $r_c < r < r_J$ qui contient la totalité des paires d'un cristal parfait non déformé (si le potentiel ne s'étend pas jusqu'aux 3èmes voisins). Le potentiel y est alors déterminé par les constantes élastiques et l'énergie de formation de la lacune. Nous désignons dans la suite ce potentiel (qui reproduit le comportement élastique du cristal) et cette région par potentiel et région "élastiques".

- une région des "fortes distances" dite (2) : $r_J < r < r_E \cong 2{,}3\ a$, où le potentiel, faible, a surtout la fonction d'assurer une transition continue vers 0. Il est déterminé par des conditions de nullité en r_E (du potentiel et de sa dérivée), et de continuité en r_J (à plusieurs ordres). r_E est choisi de sorte que la dérivée seconde du potentiel y est nulle.

- une région des courtes distances dite (3) : $r < r_c$, où nous cherchons à nous approcher d'un potentiel de Born-Mayer $U(r) = A\, e^{-br}$ en faisant coïncider notre polynôme à ce potentiel en un ou deux points (la détermination complète est assurée par des conditions de continuité en r_c).

La détermination précise des potentiels utilisés dans ces trois régions fait l'objet de l'Annexe IX.

VI.1.4 - Potentiels utilisés

Ces potentiels diffèrent principalement dans la région des courtes distances comme le montre la figure 63. Ce sont :

- le potentiel de KENNY / 36 / cité pour mémoire, calculé selon la méthode exposée plus haut dans les régions 1 et 2. En région 3 ce potentiel prend la forme d'un polynôme du 4ème degré ajusté (ainsi que sa dérivée) au potentiel de type Born-Mayer de ABRAHAMSON / 55 / au point $r_1 = 1{,}2$ Å $\cong 0{,}76$ a.

- le potentiel I (potentiel 3 de F. MAURY / 35 /) : dans les régions 1 et 2 c'est le potentiel de KENNY multiplié par 0,745 de façon à obtenir une énergie de formation de la lacune $E_L^f = 2{,}2$ eV (NIHOUL / 56 /). Dans la région 3 (définie par $r < r_c = 1{,}732$ a) F. MAURY s'est servie du potentiel qu'elle a déterminé par des mesures d'énergies de seuil de déplacement / 31 / :

$$V\ (eV) = 5\ 670\ e^{-3{,}36\ r\ (\text{Å})}$$

et a choisi d'ajuster son potentiel aux points $r_1 = 1{,}30$ a et $r_2 = 1{,}35$ a pour lesquels la valeur du potentiel de Born-Mayer varie très peu suivant les auteurs / 31 /.

Ce potentiel I n'est plus cohérent avec les constantes élastiques dans la région 1 (car multiplié par 0,745). Ceci est un handicap dans notre cas puisque nous imposons au cristal une déformation élastique.

- le potentiel II qui répond à cette nécessité de garder la cohérence entre constantes élastiques et potentiel :

  . par le choix de $r_c = 1{,}725$ a (au lieu de 1,732 a) comme limite de la région "élastique" (zone 1 : $r_c < r < r_J$). En effet, sous une contrainte dirigée suivant <110> une grande partie des distances interatomiques devient inférieure à 1,732 a et sort donc du domaine "élastique" du potentiel I.

- les potentiels III et IV : par ces potentiels nous avons cherché à nous rapprocher d'une énergie de formation raisonnable pour l'interstitiel, en modifiant la frontière r_c entre les courtes et les moyennes distances (c'est-à-dire entre le potentiel fortement répulsif et le potentiel "élastique"). Cette frontière r_c est fixée à 0,76 a pour le potentiel III (comme KENNY et al.) et à 1,60 a pour le potentiel IV (comme on le verra plus loin, l'énergie de formation de l'interstitiel varie de 15,5 eV pour $r_c = 1{,}725$ a à 4,9 eV pour $r_c = 0{,}76$ a).

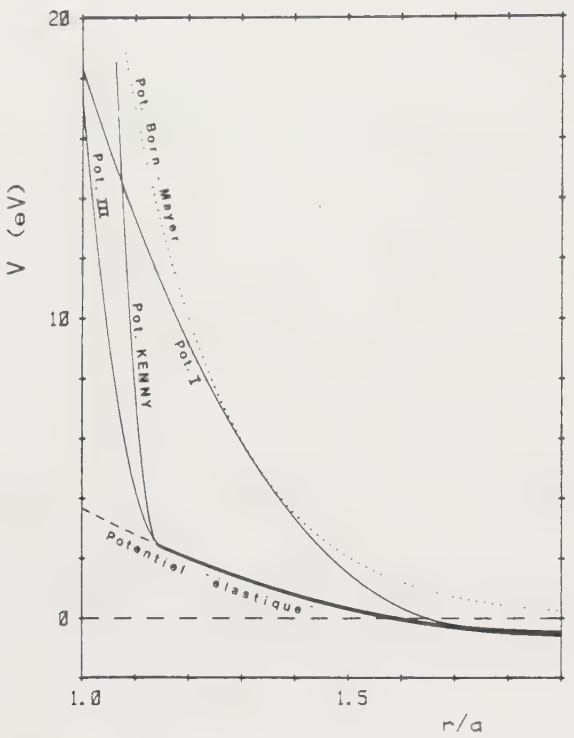


Figure 63 - Potentiel de KENNY / 36 / et potentiels I et III dans la région des courtes distances (en tirets le potentiel de Born-Mayer utilisé et le potentiel "élastique").

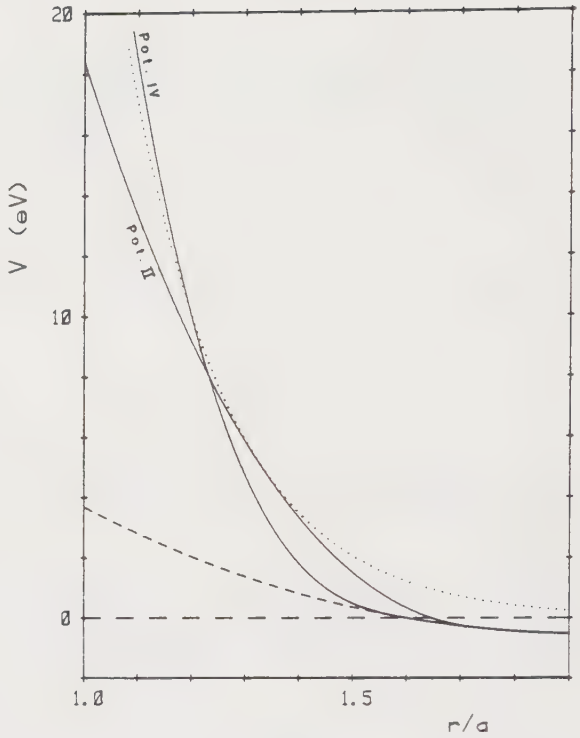


Figure 64 - Potentiels II et IV dans la région des courtes distances.

Tous ces potentiels sont représentés sur les figures 63 et 64. La principale difficulté consiste à choisir la frontière entre le domaine des courtes distances où on cherche à s'approcher d'un potentiel fortement répulsif de Born-Mayer (représenté en pointillés) et le domaine des moyennes distances où le potentiel reproduit le comportement élastique du cristal (potentiel tracé en tirets). La position de cette frontière (ainsi que les points d'ajustement) est donc la principale différence entre nos quatre potentiels. En particulier, les potentiels II, III et IV sont identiques pour $r > r_c$ et donnent donc les mêmes résultats pour des cristaux parfaits. Les deux autres frontières r_J et r_E fixées par des conditions de continuité sont pratiquement les mêmes pour tous les potentiels : $r_J \cong 2{,}1$ a et $r_E \cong 2{,}4$ a. Les caractéristiques des potentiels dans chaque région sont résumées dans le Tableau XVIII suivant. Leur définition précise (avec les coefficients A, B, C, D) figure dans l'Annexe IX.

TABLEAU XVIII

Potentiel	KENNY	I	II	III	IV
Région 1 potentiel	E_1	E_1 x 0,745	E	E	E
Région 2 potentiel	E'_1	E'_1 x 0,745	E'	E'	E'
Région 3 points d'ajustement avec le potentiel B.M.	r_1 = 0,76a (*)	r_1 = 1,30a r_2 = 1,35a	r_1 = 1,30a r_2 = 1,35a	r_1 = 0,76a r_2 = 0,80a	r_1 = 1,20a (*)
r_c/a	1,145	1,732	1,725	1,15	1,60

(*) un seul point, mais le potentiel et sa dérivée y sont ajustés. E, E_1 désignent des potentiels "élastiques" calculés à partir des constantes C_{ij} (E'_1 et E' s'en déduisent par des conditions de continuité).

VI.1.5 - Déformation du réseau

Notre calcul diffère de celui de F. MAURY par le pas 1° (voir § V.2.1) qui est la déformation uniforme du réseau.

Nous appliquons à tout le microcristal une traction uniaxiale suivant une direction K.

Nous avons construit le programme de telle façon que le module σ de la contrainte ainsi que sa direction $\vec{K}$ sont les données à introduire pour définir la déformation uniaxiale.

Nous obtenons alors aisément :

- en faisant varier $\vec{K}$ (mais dans une même famille de directions), les niveaux d'énergie que nous cherchons des différentes configurations défaut-contrainte ,
- en faisant varier σ (pour $\vec{K}$ fixe), l'influence de la contrainte.

L'effet de cette contrainte sur notre monocristal anisotrope est déterminé par l'élasticité linéaire et dépend de la direction $\vec{K}$. Le calcul des déformations, aboutissant aux formules utilisées dans le programme MOLYDEF, est exposé dans l'Annexe I.

Enfin, cette traction crée une augmentation du volume du cristal, dont il faut tenir compte pour les calculs d'énergies.

VI.2 - RÉSULTATS

Nous avons appliqué le calcul décrit précédemment à des interstitiels dissociés dans une matrice soumise à une contrainte de direction <110> (c'est le cas de nos expériences).

Nous exposerons d'abord la méthode de dépouillement, particulière au cas des cristaux déformés, puis nous examinerons l'effet des différents paramètres :

- influence de l'orientation du défaut par rapport à la contrainte,
- effet de l'amplitude de la contrainte,
- rôle de la lacune dans le cas d'une paire proche.

D'autre part, en plus de ces paramètres physiques, nous devons regarder l'effet des caractéristiques propres au calcul :

- taille du microcristal,
- potentiel de paires.

VI.2.1 - Dépouillement des résultats

Le résultat brut du calcul, pour un défaut D et une contrainte $\vec{\sigma} = \sigma \vec{K}$ donnés, est une énergie globale E_T (D, $\vec{\sigma}$) ; c'est la somme des énergies de toutes les paires du cristal qui ont évolué au cours de la relaxation du réseau autour du défaut, c'est-à-dire :

- les paires dont les deux atomes appartiennent au volume de relaxation,
- et les paires mixtes dont un atome est dans le volume de relaxation et l'autre extérieur à ce volume.

Rappelons que le potentiel est à courte portée (environ 2,4 fois la demi-maille atomique a) et donc seules les paires de distance inférieure à 2,4 a interviennent dans ce calcul.

Nous comparons ensuite cette énergie E_T (D, $\vec{\sigma}$) à celle du cristal parfait de mêmes dimensions soumis à la même contrainte E_T ($\vec{\sigma}$). Or la pression de Cauchy assure à ce cristal des conditions aux limites périodiques (ce qui est équivalent au fait que nous bloquons les atomes de surface dans la "bonne" configuration).

Si donc nous "découpons" le volume de relaxation contenant n_R atomes dans un cristal de taille infinie et que nous calculons son énergie E_R (qui est différente de E_T car les paires mixtes ne doivent être comptées que pour moitié). nous obtenons :

$$E_R (\vec{\sigma}) = n_R E_{at} (\vec{\sigma})$$

où E_{at} ($\vec{\sigma}$) est l'énergie d'un atome et ne dépend pas de la taille du microcristal.

D'autre part, la présence du défaut modifie de Δn le nombre n d'atomes du microcristal parfait ($\Delta n = +1$ pour l'interstitiel et $\Delta n = 0$ pour une paire de Frenkel). Il faut donc ajouter Δn atomes au cristal parfait qui voit alors son volume augmenté de $\Omega\ \Delta n$ (où Ω est le volume atomique).

Ceci a deux effets :

- les Δn atomes supplémentaires ajoutent $\Delta n\ E_{at}(\vec{\sigma})$ à l'énergie du cristal parfait,
- le volume du cristal infini contenant un défaut est maintenant différent de celui du cristal parfait ; nous devons donc comparer leurs enthalpies et faire intervenir le terme PaV dû à la pression atmosphérique appliquée sur ce cristal infini

Nous obtenons enfin l'énergie de configuration du défaut D sous la contrainte $\vec{\sigma}$:

$$E_{conf}(D, \vec{\sigma}) = E_T(D, \vec{\sigma}) - E_T(\vec{\sigma}) - \Delta n \cdot E_{at}(\vec{\sigma}) - p_a \Omega \Delta n$$

(Nous utilisons dans cette formule les énergies totales E_T qui contiennent toute la différence d'énergie entre le cristal parfait et le cristal contenant un défaut).

Enfin, la comparaison entre $E_R(\vec{\sigma})$ et $E_R(0)$ permet de vérifier a posteriori que le potentiel est bien compatible avec les constantes élastiques ; en effet, les énergies des microcristaux parfaits déformés ou non diffèrent par :

$$E_R(\vec{\sigma}) - E_R(0) = U\ V_R + p\ V_R$$

où

U est la densité d'énergie élastique, reliée aux constantes élastiques,
V_R est le volume du "volume de relaxation" $V_R = n_R\ \Omega$,
$p = \frac{1}{2}(C_{12} - C_{44})$ est la pression de Cauchy.

Ces équations sont vérifiées et le potentiel simule donc bien au moins le comportement élastique du cristal.

On notera que ce calcul ne tient pas compte du volume de relaxation (véritable !) du défaut. Ceci serait d'ailleurs incompatible avec la condition que les atomes frontières du microcristal restent fixes. Il s'agit là d'un défaut du calcul auquel n'a pas été trouvé de remède satisfaisant. On peut toutefois postuler que cette erreur (qui conduit à une surestimation de l'énergie de configuration) ne joue qu'un rôle secondaire dans un calcul où nous prétendonc évaluer les variations d'énergie sous contrainte et non les énergies elles-mêmes.

VI.2.2 - Conditions du calcul

Nous sommes partis des conditions les plus proches des conditions expérimentales probables :

- interstitiel dissocié suivant la direction [110] ,
- contrainte appliquée dans une direction du type <110>.

Nous avons étudié principalement l'interstitiel dissocié (sans lacune) dans un monocristal (12, 12, 12). L'interstitiel étant dissocié dans la direction fixe $\vec{D}$ [110] , nous avons fait varier :

- la direction de la contrainte :

  [110] qui nous donne le cas $\vec{\sigma} \,//\, \vec{D}$

  [1$\bar{1}$0] qui nous donne le cas $\vec{\sigma} \perp \vec{D}$

  et [101] qui nous donne le cas $(\vec{\sigma}, \vec{D}) = 60°$

- l'amplitude de $\vec{\sigma}$ (σ = 0, 30, 100, 200 hbar)
- le potentiel de paires utilisé (I, II, III ou IV).

Pour généraliser les résultats ainsi obtenus, nous avons cherché l'influence :

- d'un changement de dimension du microcristal (en plaçant un interstitiel dissocié dans un cristal (16, 12, 12)),
- de la présence d'une lacune.

L'ensemble des résultats bruts est donné en Annexe X . Sauf mention contraire, les résultats donnés dans les paragraphes suivants concernent un interstitiel dissocié seul dans un microcristal (12, 12, 12).

VI.2.3 - Résultats

VI.2.3.1 - Energie de configuration de l'interstitiel (sans contrainte extérieure)

L'énergie de configuration de l'interstitiel (ou de la paire de Frenkel) est calculée pour chaque potentiel comme on l'a vu en V.3.1 :

$$E_i \text{ (ou } E_{p.f.}) = E_T (D, \vec{O}) - E_T (\vec{O}) - \Delta n \,.\, E_{at} (\vec{O}) - p\Omega_a \quad \Delta n$$

où Ω étant le volume atomique, $p\Omega_a$ vaut environ 10^{-4}eV et est donc négligeable.

Pour la paire de Frenkel, comme l'a montré F. MAURY / 35 /, le niveau dépend de la direction de dissociation de l'interstitiel par rapport à la direction de la paire lacune-interstitiel. Nous nous sommes limités au cas représenté sur la figure 61 : paire 400 "cas B" (c'est-à-dire avec un vecteur lacune-interstitiel de coordonnées (4a, 0, 0) et un haltère dissocié à 45° suivant [110]), et ce pour le seul potentiel I. Pour les paires, on a $\Delta n = 0$ et donc :

$$E_{p.f.} = E_T (D, \vec{O}) - E_T (\vec{O}) = 20{,}5 \text{ eV}$$

Pour l'interstitiel dissocié seul ($\Delta n = + 1$), toutes les configurations sont équivalentes et nous obtenons :

TABLEAU XIX

Potentiel	I	II	III	IV
E_i (eV)	15,0	15,5	4,9	6,8

Les énergies découlant des potentiels I et II (pour la paire de Frenkel et pour l'interstitiel) sont manifestement trop élevées. Il y a plusieurs explications à cela :

- la dimension du cristal : d'après F. MAURY / 35 /, l'énergie E_i décroît et tend à se saturer lorsque la taille du cristal augmente (voir la figure 67); nous sommes sans doute encore loin du minimum, mais cela n'explique certainement pas toute l'erreur ;

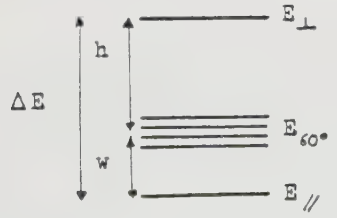
- le blocage des frontières : les atomes frontière du microcristal sont fixés, n'autorisant aucune augmentation du volume du cristal. Ceci limite la relaxation des atomes et tend naturellement à augmenter E_i. Il est difficile d'évaluer cette erreur ; on peut supposer qu'elle équivaut à comprimer notre cristal au maximum de $\frac{\Delta V}{V} = - \frac{\Omega}{V}$ et calculer l'énergie correspondante, soit 3eV dus principalement à l'effet de la pression de Cauchy.

- enfin, les potentiels I et II sont peut-être trop élevés dans la région des distances intermédiaires $1,2 < r/a < 1,7$.

Les potentiels III et IV sont choisis plus faibles dans cette zone et donnent des énergies de configuration plus plausibles.

VI.2.3.2 - Séparation des niveaux par la contrainte

L'application d'une contrainte extérieure a pour effet de séparer les niveaux des six types d'interstitiels dissociés. Dans tous les cas (sauf pour le potentiel III sur lequel nous reviendrons en V.3.4) cette séparation est celle que nous attendions : l'interstitiel dissocié perpendiculairement à la contrainte a le niveau le plus élevé, l'interstitiel parallèle le niveau le plus bas.



L'haltère parallèle à la contrainte est bien le plus stable.

Les deux différences d'énergies h et w ne sont pas égales mais le rapport $w/(h + w)$ est pratiquement constant pour un potentiel donné, quelle que soit la contrainte :

Potentiel	I	II	IV
w/(h + w)	0,30	0,43	0,29

Ce rapport est du même ordre quel que soit le potentiel choisi : le niveau intermédiaire se trouve environ au tiers inférieur.

VI.2.3.3 - Effet de l'amplitude de la contrainte

Traçons la différence d'énergie $\Delta E = (E_{\perp} - E_{//}) = h + w$ en fonction de la contrainte extérieure σ pour les deux potentiels II et IV (pour le potentiel I nous n'avons pas fait varier σ). Cette différence d'énergie est pratiquement proportionnelle à σ au moins jusqu'à σ = 100 hbar et se sature ensuite (figure 65). Dans le domaine de nos expériences ($\sigma \cong 30$ kg/mm^2 $\cong$ 30 hbar), ΔE est bien proportionnel à σ. Il en est de même pour h et w.

Le coefficient de proportionnalité $\Delta E/\sigma$ dépend du potentiel tout en restant du même ordre de grandeur.

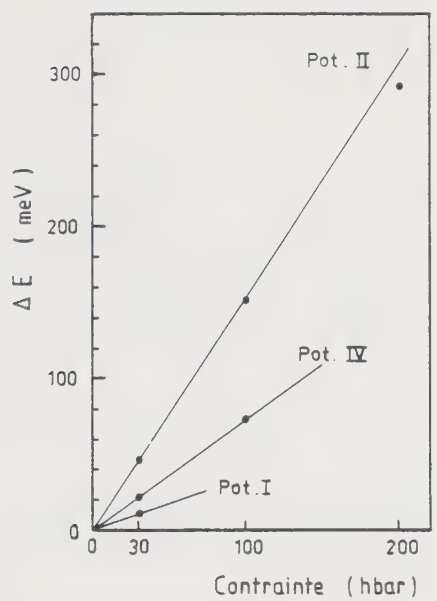
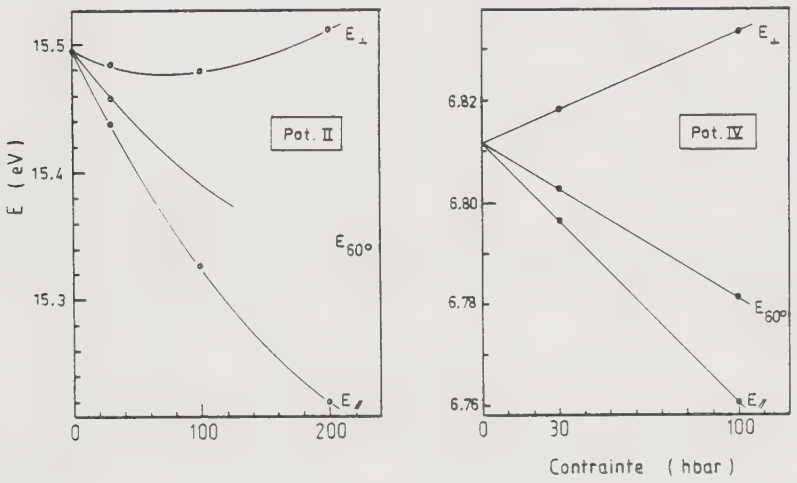


Figure 65 - Ecart d'énergie $\Delta E = E_{\perp} - E_{//}$ en fonction de la contrainte pour les potentiels I, II et IV.

VI.2.3.4 - Déplacement des niveaux

Nous avons vu comment les niveaux des différents interstitiels se placent les uns par rapport aux autres. Regardons ce que devient l'énergie E_i de l'interstitiel calculée en V.3.3.1. Cette énergie E_i est tracée en fonction de σ sur la figure 66.a pour le potentiel II et sur la figure 66.b pour le potentiel IV. Pour le potentiel IV les niveaux varient linéairement avec la contrainte, le niveau $E_{\perp}$ monte tandis que les niveaux $E_{60°}$ et $E_{//}$ baissent. Pour le potentiel II, il n'y a plus linéarité mais $E_{60°}$ et $E_{//}$ baissent aussi. Dans tous les cas la varia-

tion de niveau est faible puisqu'inférieure à 1 °/₀₀ pour σ = 100 hbar (soit 102 kg/mm^2). Avec le potentiel I, nous n'avons de résultats que pour la contrainte σ = 30 hbar. Tous les niveaux baissent, de façon un peu plus importante (environ 4 °/₀₀).



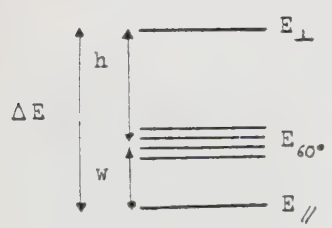
Figures 66 a et b - Energie des trois configurations en fonction de la contrainte pour le potentiel II (66.a) et le potentiel IV (66.b).

VI.2.4 - Influence des conditions du calcul

VI.2.4.1 - Présence de la lacune

Avec le potentiel I nous avons calculé l'énergie de configuration d'une paire de Frenkel (400) "cas B" placée dans un monocristal (16, 12, 12) (cas décrit par la figure 61), et ce pour les trois directions de contraintes [110] , [101] et [1$\bar{1}$0] (avec σ = 30 hbar). Dans les mêmes conditions (potentiel I, monocristal (16, 12, 12), mêmes contraintes) nous avons déterminé l'énergie de configuration d'un interstitiel dissocié seul (mais seulement pour les cas $\sigma_{//}$ et $\sigma_{\perp}$).

Les résultats obtenus pour la paire de Frenkel sont très semblables à ceux de l'interstitiel seul :



- les niveaux sont dissociés de la même façon avec un rapport w/(h + w) = 0,34 donc un niveau intermédiaire environ au tiers inférieur comme lorsqu'il n'y a pas de lacune (voir (§ V.3.3.2) ;
- comme pour l'interstitiel seul avec un potentiel I (dans un cristal (12, 12, 12)) tous les niveaux baissent avec la contrainte, et d'environ 3 °/₀₀ ;

- quantitativement, il faut comparer interstitiel et paire de Frenkel placés dans le même microcristal (16, 12, 12).

Nous obtenons :

$$\Delta E = 9{,}2 \text{ meV pour la paire}$$
$$\text{et } \Delta E = 8{,}9 \text{ meV pour l'interstitiel}$$

En conclusion la lacune n'apporte qualitativement aucune modification aux résultats. Quantitativement elle ne donne que de faibles corrections sur des résultats eux-mêmes numériquement sujets à erreurs.

VI.2.4.2 - Dimension du cristal

F. MAURY / 35 / a calculé et tracé l'énergie E_i de l'interstitiel seul en fonction de la dimension du microcristal cubique dans lequel il est placé (c'est-à-dire l'arête du cube).

Comme on pouvait le supposer, l'énergie décroît et tend à se saturer lorsque le cristal grandit (voir figure 67). Avec notre microcristal (12, 12, 12) nous sommes encore loin de la saturation. Nous nous sommes toutefois limités à cette dimension pour des raisons de durée du calcul et d'économie. Nos énergies de configuration sont donc surestimées. Pour les écarts de niveaux créés par la contrainte nous disposons d'une seule donnée : la comparaison des valeurs $E_1 + E_2$ (écart entre les niveaux extrêmes) pour l'interstitiel dissocié dans un microcristal (16, 12, 12) ou (12, 12, 12) :

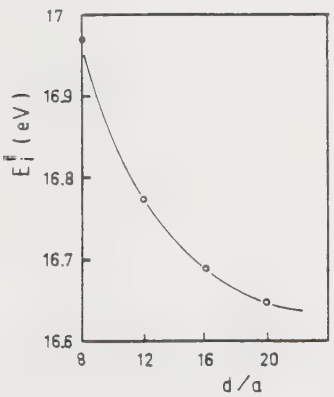


Figure 67 - Energie de configuration de l'haltère en fonction de la taille du microcristal.

$\Delta E = 10{,}8$ meV pour (12, 12, 12)

$\Delta E = 8{,}9$ meV pour (16, 12, 12)

le tout avec le potentiel I. Il apparaît donc que l'écart d'énergie diminue lorsque le cristal grandit, sans toutefois inverser l'ordre des niveaux.

VI.2.4.3 - Potentiel

Nous avons utilisé quatre potentiels différents décrits dans V.2.4. Le lecteur attentif n'est pas sans avoir remarqué que nous avons soigneusement mis de côté le potentiel III. Les résultats obtenus avec ce potentiel sont totalement différents des autres et incohérents : l'ordre des niveaux s'inverse d'une amplitude de contrainte à l'autre. Nous avons eu une explication du phénomène en traçant les potentiels (figure 63). Le potentiel III (de même que le potentiel de KENNY et al.) présente une "cassure" au niveau de r_c (malgré une continuité au

2ème ordre en ce point). Les atomes de l'haltère se rapprochent jusqu'à atteindre cette valeur r_c où ils butent ! (le programme imprime les positions des atomes de l'haltère et des atomes voisins). Dans ces conditions cette cassure, qui n'a rien de physique, joue un rôle important dans les résultats et nous avons éliminé ce potentiel, le citant seulement parce que, copié sur celui de KENNY et al., il nous a permis de trouver comme eux une énergie de configuration de l'interstitiel d'environ 8 eV (5 eV en tenant compte du terme pV).

Revenant aux autres potentiels (I, II et IV), dont le n° IV qui donne lui aussi une bonne valeur de l'énergie de formation de l'interstitiel, nous constatons que les résultats qualitatifs sont les mêmes dans les trois cas, la valeur de l'écart d'énergie étant, elle, différente. Nous comparons dans le tableau, pour une contrainte σ = 30 hbar ($\simeq$ 30,6 kg/mm^2) les écarts maximum ($E_\perp - E_{//}$) = ΔE en valeur absolue et rapportés à l'énergie E_i pour les trois potentiels :

TABLEAU XX

Potentiel	I	II	IV
ΔE meV	10,8	46,3	21,9
1000 x $\Delta E/E_i$	0,72	3,0	3,2

Ces valeurs sont très différentes. Seul demeure l'ordre de grandeur (quelques dizaines de meV pour $E_\perp - E_{//}$).

VI.3 - Conclusion

Tous les calculs, faits avec différents potentiels, défauts, microcristaux, conduisent aux mêmes résultats :

- l'interstitiel dissocié le plus stable est parallèle à la contrainte, l'interstitiel perpendiculaire étant le moins stable.
- le niveau intermédiaire (interstitiel à 60° avec la contrainte) se trouve environ au tiers inférieur.
- les écarts en énergie h, w et ΔE sont proportionnels à la contrainte au moins jusqu'à σ = 100 kg/mm^2.
- l'écart maximum ΔE (soit $E_\perp - E_{//}$) est de l'ordre de quelques dizaines de meV pour $\sigma \simeq$ 30 kg/mm^2.

La présence de la lacune et la taille du microcristal n'ont que peu d'influence (et seulement quantitative) sur les résultats. De même, seuls les résultats quantitatifs (niveaux d'énergie) sont sensibles (mais fortement) au choix du potentiel parmi trois potentiels assez différents.

ANNEXES

Annexe I - Déformations élastiques d'un monocristal.

Annexe II - Mesure de l'élastorésistance.

Annexe III - Les expériences aux électrons - Conditions expérimentales.

Annexe IV - Dépouillement particulier des expériences aux électrons.

Annexe V - Energies d'activation déterminées par la méthode des changements de pente. Calcul d'erreur.

Annexe VI - Courbes de relaxation.

Annexe VII - Décomposition des courbes de relaxation en deux exponentielles.

Annexe VIII - Modèle cinétique : Calculs.

Annexe IX - Détermination du potentiel de paires.

Annexe X - Résultats du calcul de "Lattice Statics".

ANNEXE I

DEFORMATIONS ELASTIQUES D'UN MONOCRISTAL SOUS UNE CONTRAINTE UNIAXIALE DIRIGEE SUIVANT $\vec{K} \begin{vmatrix} K_1 \\ K_2 \\ K_3 \end{vmatrix}$

Le tenseur de rang 4 des constantes élastiques d'un cristal cubique est mesuré dans un repère $(\vec{i}, \vec{j}, \vec{k})$ formé des axes d'ordre 4, c'est-à-dire les axes (100).

D'autre part, le tenseur de contraintes s'écrit simplement dans un repère orthonormé où $\vec{K}$ est suivant l'un des axes. Nous choisissons le repère $(\vec{I}, \vec{J}, \vec{K})$, $\vec{I} = \dfrac{\vec{K} \wedge \vec{k}}{||\vec{K} \wedge \vec{k}||}$ et $\vec{J} = \vec{K} \wedge \vec{I}$.

On obtient le tenseur de contraintes dans le repère $(\vec{i}, \vec{j}, \vec{k})$ par un changement de repère qui donne :

$$\sigma_{ij} = a_i^L \, a_j^M \, \sigma_{LM}$$

où

i et j sont les coordonnées dans le repère $(\vec{i}, \vec{j}, \vec{k})$

L et M sont les coordonnées dans le repère $(\vec{I}, \vec{J}, \vec{K})$.

Les a_i^L sont définis par $a_i^L = \vec{L}.\vec{i}$

Seul $\sigma_{ZZ} = \sigma$ est non nul (dans le repère $\vec{I}, \vec{J}, \vec{K}$) et les a_i^Z sont les coordonnées de K.

On a donc :

$$\begin{cases} \sigma_{xx} = \sigma \, K_1^2 \\ \sigma_{xy} = \sigma \, K_1 K_2 \\ \sigma_{xz} = \sigma \, K_1 K_3 \end{cases} \qquad \begin{cases} \sigma_{yy} = \sigma \, K_2^2 \\ \sigma_{yz} = \sigma \, K_2 K_3 \\ \sigma_{zz} = \sigma \, K_3^2 \end{cases}$$

On en tire les déformations par $e = S.\sigma$

$$\begin{cases} \frac{e_{xx}}{\sigma} = S_{11} K_1^2 + S_{12} (K_2^2 + K_3^2) \\ \frac{e_{yy}}{\sigma} = S_{11} K_2^2 + S_{12} (K_1^2 + K_3^2) \\ \frac{e_{zz}}{\sigma} = S_{11} K_3^2 + S_{12} (K_1^2 + K_2^2) \end{cases} \qquad \begin{cases} \frac{e_{yz}}{\sigma} = S_{44} K_2 K_3 \\ \frac{e_{zx}}{\sigma} = S_{44} K_1 K_3 \\ \frac{e_{xy}}{\sigma} = S_{44} K_1 K_2 \end{cases}$$

Les déplacements s'en déduisent par :

$$u_i = \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} e_{ij} x_j + e_{ii} x_i$$

Les formules finales de déformation du réseau, introduites dans le programme MOLYDEF sont :

$$\begin{cases} u_x = \frac{1}{2} S_{44} \sigma K_1 (K_2 y + K_3 z) + \sigma x \left[S_{11} K_1^2 + S_{12} (K_2^2 + K_3^2) \right] \\ u_y = \frac{1}{2} S_{44} \sigma K_2 (K_1 x + K_3 z) + \sigma y \left[S_{11} K_2^2 + S_{12} (K_1^2 + K_3^2) \right] \\ u_z = \frac{1}{2} S_{44} \sigma K_3 (K_1 x + K_2 y) + \sigma z \left[S_{11} K_3^2 + S_{12} (K_2^2 + K_1^2) \right] \end{cases}$$

<u>Application à la direction <110></u> $\qquad K_1 = K_2 = \frac{1}{\sqrt{2}} \qquad K_3 = 0$

$$\begin{cases} \frac{e_{xx}}{\sigma} = \frac{S_{11} + S_{12}}{2} \\ \frac{e_{yy}}{\sigma} = \frac{S_{11} + S_{12}}{2} \\ \frac{e_{zz}}{\sigma} = S_{12} \end{cases} \qquad \begin{cases} e_{yz} = e_{zx} = 0 \\ \frac{e_{xy}}{\sigma} = \frac{S_{44}}{2} \end{cases}$$

soit pour les déplacements relatifs :

$$\begin{cases} \frac{u_x}{\sigma} = \frac{1}{2} (S_{11} + S_{12}) x + \frac{1}{4} S_{44} y \\ \frac{u_y}{\sigma} = \frac{1}{4} S_{44} x + \frac{1}{2} (S_{11} + S_{12}) y \\ \frac{u_z}{\sigma} = S_{12} z \end{cases}$$

. Le long de l'axe de la contrainte, un segment unitaire ($x = y = \frac{1}{\sqrt{2}}$, $z = 0$) se déforme : $u_x = u_y = \frac{1}{2\sqrt{2}} (S_{11} + S_{12} + \frac{S_{44}}{2}) \sigma$ et $u_z = 0$.

D'où $|u| = \frac{1}{2} (S_{11} + S_{12} + \frac{S_{44}}{2}) \sigma$ et donc $E = \frac{2}{S_{11} + S_{12} + S_{44}/2}$.

. Perpendiculairement à la contrainte, un vecteur unitaire $\vec{OM}$ est donné par :

$$x^2 + y^2 + z^2 = 1$$
$$x + y = 0$$

D'où :

$$\left| \begin{array}{l} \frac{u_x}{\sigma} = \left[\frac{1}{2} (S_{11} + S_{12}) - \frac{1}{4} S_{44} \right] x \; x \\ \\ \frac{u_y}{\sigma} = \left[\frac{1}{2} (S_{11} + S_{12}) - \frac{1}{4} S_{44} \right] \times (-x) \\ \\ \frac{u_z}{\sigma} = S_{12} \; z \end{array} \right.$$

La déformation parallèle à $\vec{OM}$ est donnée par $\vec{u}.\vec{OM}$:

$$\frac{u_{//OM}}{\sigma} = \left[\frac{1}{2} (S_{11} + S_{12}) - \frac{1}{4} S_{44} \right] (x^2 + y^2) + S_{12} \; z^2$$

$$= \frac{1}{2} (S_{11} + S_{12}) - \frac{1}{4} S_{44} + (\frac{S_{12}}{2} - \frac{S_{11}}{2} + \frac{S_{44}}{4}) \; z^2$$

Or la déformation le long de $\vec{K}$ vaut $\frac{1}{2} (S_{11} + S_{12} + S_{44}/2)$.

D'où :

$$\nu = - \frac{u_{//OM}}{u_{//K}} = - \frac{S_{11} + S_{12} + S_{44}/2}{S_{11} + S_{12} - S_{44}/2 + (S_{12} - S_{11} + S_{44}/2) \; z^2}$$

z^2 varie entre 0 et 1, d'où :

$$\nu_{min} = 0{,}237$$
$$\nu_{max} = 0{,}385$$

dans le cas du molybdène où :

$$\left|\begin{array}{l} S_{11} = \quad 0{,}28 \ .10^{-12} \ \mathrm{cm^2/dyne} \\ S_{12} = -\ 0{,}078.10^{-12} \ \mathrm{cm^2/dyne} \\ S_{44} = \quad 0{,}91 \ .10^{-12} \ \mathrm{cm^2/dyne} \end{array}\right.$$

ANNEXE II

MESURE DE L'ELASTORESISTANCE

A.II.1 - Le branchement et la mesure de $\frac{\delta R}{R}$
A.II.2 - La mesure de longueur et de pression
A.II.3 - Création de la contrainte
A.II.4 - Le cycle de mesures
A.II.5 - Calcul de K
A.II.6 - Calcul d'erreur sur K

A.II.1 - LE BRANCHEMENT ET LA MESURE DE $\frac{\delta R}{R}$

L'échantillon est monté dans la capsule en série avec un témoin de résistance étalon R_E qui n'est pas soumis à la contrainte. Echantillon et témoin sont reliés à un pont de Kelvin par deux prises de potentiel chacun (schéma ci-contre). Un galvanomètre est branché entre les points M et N.

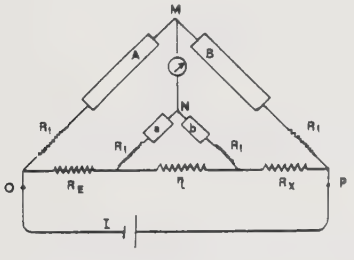


Figure 68 - Montage en pont de Kelvin.

Les résistances A, a, B, b sont internes au pont. B et b ont des valeurs fixes de 1, 10, 100 ou 1 000 Ω, et on choisit B = b. Par construction A = a et sa valeur est ajustable par pas de 0,1 Ω entre 0 et 999 Ω.

Le courant de déséquilibre traversant le galvanomètre est :

$$ig = I \times \frac{AR_X - BR_E + \varepsilon (Ab - Ba)}{(B + R_X + \varepsilon b)(A + R_E + \varepsilon a) + (A + B + R_X + R_E + \varepsilon a + \varepsilon b)(R_g + \frac{\varepsilon ab}{\eta})}$$

où $\varepsilon = \frac{\eta}{a + b + \eta}$

Le terme Ab - Ba n'est pas tout à fait nul car il faut ajouter aux résistances internes du pont les résistances de ligne entre le montage et le pont. Ces résistances sont d'environ 5 Ω pour le montage destiné à l'accélérateur. Elles varient en fonction de la température de la pièce, mais sont peu différentes les unes des autres (0,1 Ω environ).

Toutefois, pour supprimer ce terme, on a intérêt :

1 - à choisir B suffisamment élevé pour que R_1 soit négligeable devant B,

2 - à choisir A ≅ B, c'est-à-dire $R_X \cong R_E$ pour la même raison,

3 - au montage, à minimiser la résistance η entre échantillon et témoin pour réduire ε.

Ces conditions étant remplies, au début de chaque série de mesures nous équilibrons le pont en ajustant A. On a alors $AR_X \cong BR_E$.

Ensuite, lorsque sous l'effet de la traction la résistance R_X varie (toujours faiblement : $\frac{\delta R_X}{R_X} \sim 10^{-3}$) elle induit un courant de déséquilibre :

$$ig \cong I \frac{A}{D} \delta R_X$$

où $D \cong AB + (A+B)\left(Rg + \frac{ab}{a+b}\right)$

(car $\eta \cong R_X \cong R_E \cong 10^{-2}\ \Omega$, $A \cong B \cong 100\ \Omega$ et $R_g \cong 17\ \Omega$).

D'où

$$\boxed{ig \cong I \frac{AR_X}{D} \left(\frac{\delta R_X}{R_X}\right)}$$

Le courant de déséquilibre est proportionnel :

- à la variation de résistance $\frac{\delta R_X}{R_X}$
- à la résistance R_X pour une même variation relative
- au courant I aux bornes O et P du montage
- et grossièrement à $\frac{1}{B}$ car on choisit en général A ≅ B et donc $\frac{A}{D} \cong \frac{1}{2B}$.

La sensibilité est proportionnelle à $\frac{1}{B}$ et le bruit dû aux résistances de ligne augmente lorsque B diminue. Le choix de B résulte donc d'un compromis.

Le courant de déséquilibre est donc proportionnel à la variation relative de résistance. Il est amplifié une seconde fois dans notre montage par un amplificateur galvanométrique. Il faut donc l'étalonner. C'est ce que l'on fait en remarquant qu'une variation δA de la résistance A (et donc δa = δA de a) crée un courant :

$$ig \cong \frac{I}{D} \times R_X \, \delta A - \frac{I}{D^2} \left[B + Rg + b \right] \delta A \times (AR_X - BR_E)$$

où le deuxième terme est négligeable dans notre cas (car R_X est beaucoup plus petit que A et B).

Donc $ig \cong \frac{I}{D} AR_X \left(\frac{\delta A}{A}\right)$; le coefficient de proportionnalité est le même que pour une variation $\frac{\delta R_X}{R_X}$. On étalonne donc le système en mesurant l'effet d'une variation connue $\left(\frac{\delta A}{A}\right)$.

A.II.2 - LA MESURE DE LONGUEUR ET DE PRESSION

L'allongement est mesuré par un capteur inductif alimenté en courant alternatif. Le signal est redressé et amplifié par un pont Schaevitz CAS 2500 Z.

La pression est mesurée par un capteur de pression fonctionnant suivant un principe semblable : les variations de pression déplacent une membrane dont les mouvements sont suivis par un capteur de déplacement. Le signal de ce dernier est redressé et amplifié par un deuxième pont Schaevitz CAS 2500 Z.

Ces deux systèmes demandent à être étalonnés. Le capteur de pression est à température ordinaire. Il est étalonné à l'aide d'un manomètre de précision.

Le capteur de déplacement peut être étalonné à l'aide d'une vis micrométrique aux différentes températures où il est utilisé. Toutefois, les résistances de ligne jouant un rôle non négligeable, nous l'étalonnons indirectement à l'aide du soufflet de la machine in situ.

En effet, chaque soufflet est d'abord testé sur une machine de traction "Inströn". Ces tests sont décrits plus en détail dans / 11 /. Ils consistent à tracer :

- pour des pressions P variant de - 1 bar à + 8 bar les courbes de traction F(L) du soufflet : $\delta F = f_c \, \delta L$; on vérifie que ces courbes sont parallèles (f_c ne dépend pas de P). Leur écartement donne l'effet de la pression : $f_p = \frac{\delta P}{\delta L}$

- pour un soufflet maintenu immobile la force (mesurée par une cellule de force) créée par une pression P : $S_{eff} = \frac{\delta F}{\delta P}$.

Ces trois paramètres sont reliés par $f_c = S_{eff} \cdot f_p$.

VON STEBUT a constaté que les caractéristiques des soufflets entre 300 K, 77 K et 4 K varient de façon semblable :

$$\frac{f_p\ (4\ K)}{f_p\ (300\ K)} = \frac{f_c\ (4\ K)}{f_c\ (300\ K)} \cong 1,13$$

$$\frac{f_p\ (77\ K)}{f_p\ (300\ K)} = \frac{f_c\ (77\ K)}{f_c\ (300\ K)} \cong 1,11$$

Nous avons donc étalonné les soufflets à 300 K seulement.

La courbe de traction du soufflet à une température donnée T nous permet alors d'étalonner le capteur de déplacement à cette température, lorsque le capteur de pression est étalonné.

A.II.3 - CRÉATION DE LA CONTRAINTE

Le petit soufflet de la machine est relié par un fin capillaire à un gros soufflet que l'on peut comprimer ou détendre par un moteur, augmentant ou diminuant ainsi la contrainte. Un système de relais inductifs est déclenché par un aimant situé sur le bras de la table XY (voir figure 69).

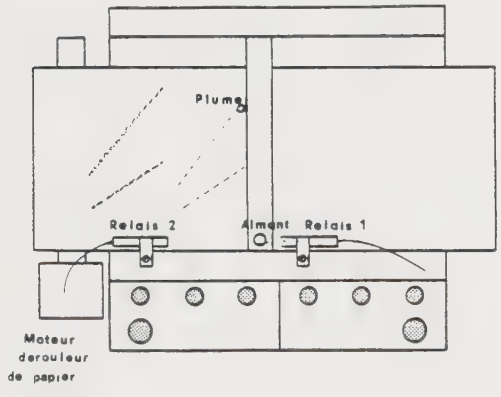


Figure 69

Ce système permet de retrouver toujours le même domaine de traction puisqu'on se fixe sur la déformation de l'échantillon (sauf en cas d'écrouissage).

Le relais 1 inverse le moteur du gros soufflet et donc amorce la descente de la contrainte à la déformation maximale choisie.

Le relais 2 commande un relais temporisé qui arrête le moteur à la fin d'un cycle de traction et déclenche un dérouleur du papier de la table XY pendant un temps t. Ensuite, le dérouleur s'arrête et le moteur du soufflet, inversé, commence la montée de la contrainte pour le cycle suivant.

Les cycles de traction (montée et descente superposées) peuvent donc être tracés en continu.

D'autre part, ce système d'inversion, commandé par la mesure de la déformation, permet de retrouver toujours le même domaine de traction, y compris entre deux cycles de mesure différents (sauf en cas d'écrouissage).

A.II.4 - LE CYCLE DE MESURES

Une mesure d'élastorésistivité se déroule comme suit :

- mesure de R_X et R_E, le pont étant débranché (pour connaître ρ), et des résistances de ligne R_l,
- équilibrage du pont,
- étalonnage du pont (branché !) par des variations $\frac{\delta A}{A}$ de l'ordre de 1 °/₀₀ à 1 % : une dizaine de mesures,
- cycles de traction : montée et descente de la contrainte une quinzaine de fois, avec enregistrement simultané des courbes de traction et d'élastorésistance,
- éventuellement, tracé de la courbe de traction du soufflet (pour l'étalonnage du capteur de déplacement) et étalonnage du capteur de pression, sauf si ces mesures ont été déjà faites dans les mêmes conditions.

L'ensemble de la mesure prend environ 2 heures.

A.II.5 - CALCUL DE K

L'élastorésistance $K = \frac{1}{\varepsilon} \frac{\delta R}{R}$ est calculée à partir de la pente p des courbes recueillies sur la table traçante XY (voir la figure 5 du Chapitre I)

$$p = y_{mV} / x_{mV}$$

Le signal résistif y est étalonné à l'aide d'une variation connue δA d'une résistance étalon A du pont (voir § A.II.1). Cette variation produisant un signal r, la sensibilité du système est :

$$\alpha = \frac{r\ (A + R_l)}{\delta A}$$

en mV par variation unitaire de R (comme on le voit sur la figure 68, la résistance de ligne R_l doit en effet être comptée).

Le capteur de déplacement est étalonné indirectement par l'intermédiaire du soufflet et dans les conditions de l'expérience. Sa sensibilité n en mV/µm, après amplification par un pont Schaevitz, vaut environ :

$$n \cong 2\ mV/\mu m$$

On obtient finalement :

$$\delta l = x / n$$

et

$$\delta R/R = y / \alpha$$

soit $$K = \frac{1}{\varepsilon}\frac{\delta R}{R} = \frac{ln}{x} \times \frac{y}{\alpha} = \frac{ln}{\alpha} \times p$$

où l est exprimé en µm.

A.II.6 - Calcul d'erreur sur K

Ce calcul est détaillé en Annexe IV dans la thèse de DELSARTE / 60 /.

L'erreur relative sur K :

$$|\Delta K/K| < |\Delta l/l| + |\Delta n/n| + |\Delta p/p| + |\Delta\alpha/\alpha|$$

comprend deux erreurs systématiques, égales pour toutes les mesures d'une expériences, $|\Delta l/l|$ et $|\Delta n/n|$.

$|\Delta l/l|$ est inférieur à 10^{-2} pour nos échantillons malgré leur faible longueur car le facteur de forme de l'échantillon, obtenu grâce aux mesures de rapports $R_{300\ K}/R_{4\ K}$ permet une bonne détermination de la longueur.

$|\Delta n/n|$ est inférieur à 3.10^{-2}

et $|\Delta\alpha/\alpha|$ est inférieur à 10^{-2}

L'erreur sur l'évaluation de la pente p est variable, diminuant lorsque R augmente ou lorsque le domaine élastique s'étend. Pour chaque "point" de mesure, nous effectuons au moins 10 cycles de traction, ce qui permet à la fois d'évaluer et de diminuer cette erreur ($\Delta p/p$) est compris entre 2.10^{-2} et 10^{-1} (maximum).

L'erreur relative totale sur K est alors comprise entre 7.10^{-2} et $1{,}5.10^{-1}$, dont une erreur systématique de 4.10^{-2} environ (qui n'intervient pas pour la comparaison des différentes mesures d'une même série d'expériences, par exemple Cu 1 ou Cu 2).

D'autre part, χ vaut $(K - (1 + 2\nu)) \times \rho$. L'erreur sur ρ étant faible ($< 10^{-2}$) , l'erreur sur l'élastorésistivité est donc :

$$\delta\chi \cong \rho\ \delta K.$$

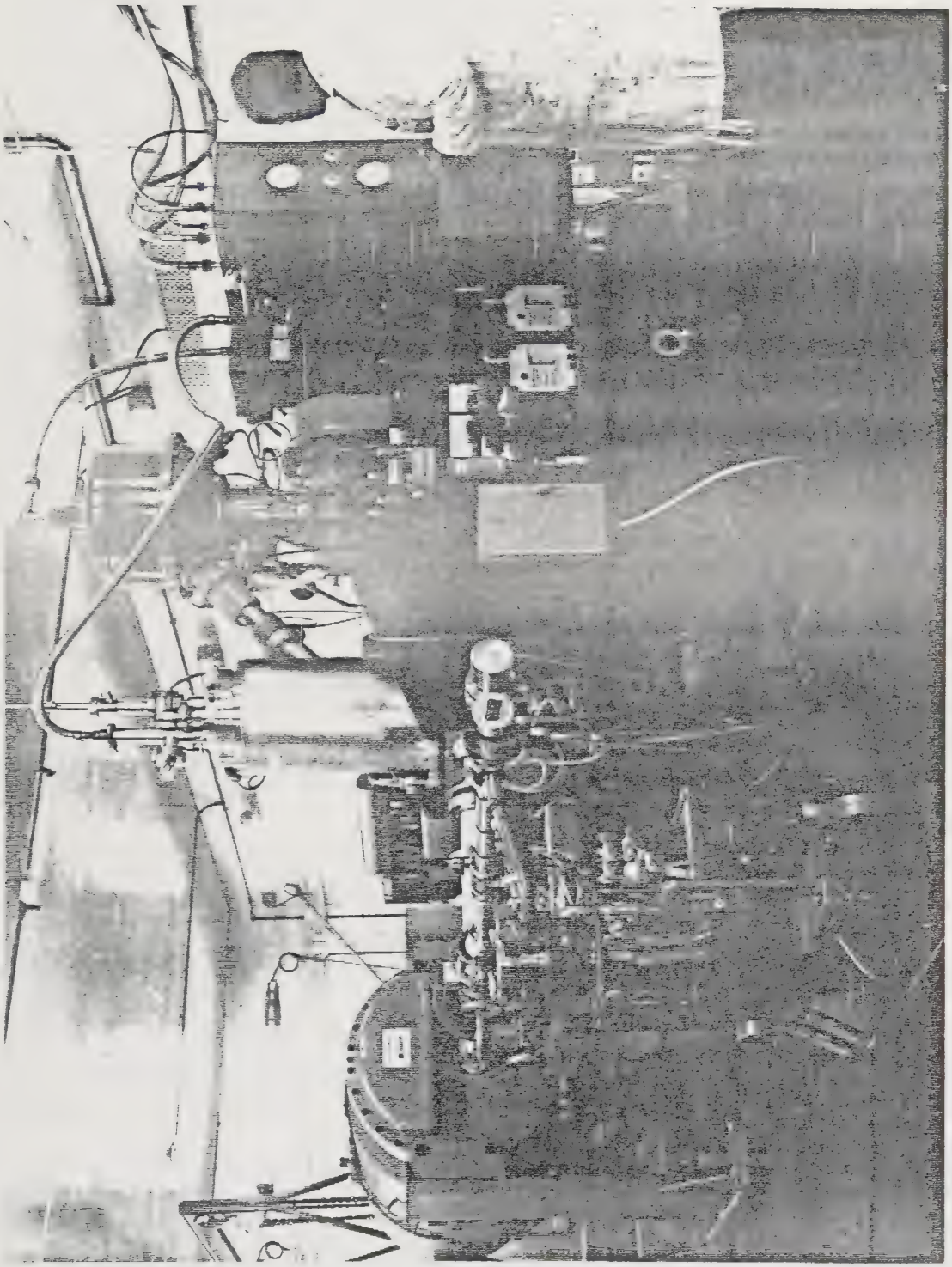


Figure 70 - Accélérateur VAN DE GRAAFF de la SESI (CEN-FAR).

Au premier plan : le cryostat et à droite le cryogénérateur.
Au fond : l'accélérateur.
Entre les deux : "l'extension" comprenant des dispositifs d'alignement, de focalisation, etc...

ANNEXE III

LES EXPERIENCES AUX ELECTRONS - CONDITIONS EXPERIMENTALES

A.III.1 - LE DISPOSITIF D'IRRADIATION

Toutes les irradiations ont eu lieu dans l'accélérateur d'électrons de type VAN DE GRAAFF de la S.E.S.I. à Fontenay-aux-Roses (figure 70).

Cet accélérateur fournit des électrons d'énergie fixée entre 0,4 MeV et 2,7 MeV avec un courant maximum de 250 µA.

J. DURAL, J. ARDONCEAU et J.C. JOUSSET ont réalisé une extension du canon à électrons permettant le couplage à des systèmes cryogéniques divers.

A.III.2 - DISPOSITIF CRYOGÉNIQUE A 20 K

Pour les expériences à environ 20 K nous avons utilisé le dispositif VINKAC visible sur la figure 70 (conçu et réalisé par J. DURAL et décrit dans / 60 /.

Il consiste en un cryostat super isolé à queue interchangeable visible au centre de la photo, relié à un cryogénérateur Philips (à droite sur la photo).

L'ensemble cryostat + queue est construit suivant le même principe que celui à 4 K (figure 72).

La queue d'irradiation, pratiquement identique pour toutes les expériences, est schématisée sur la figure 71 et maintient l'échantillon dans le liquide cryogénique.

Le système fonctionne en circuit fermé avec un fluide cryogénique qui est le plus souvent de l'hydrogène (T ≅ 20 K).

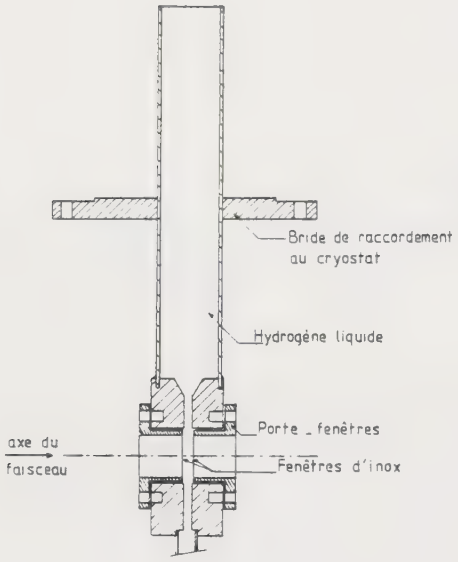


Figure 71 - Queue d'irradiation "Oracle" ; elle est fixée par la bride au cryostat et l'irradiation se fait à travers les fenêtres (partie basse).

La puissance cryogénique disponible pour compenser les pertes (du cryostat, de l'échantillon, de la queue, etc, ...) est en moyenne de 60 Watts à 20 K (et nulle en principe vers 11 K). Elle est très excédentaire à 20 K et la température est maintenue constante par un chauffage pulsé dont la fréquence et la durée des impulsions sont déterminées par une régulation sur la pression du bain, de type proportionnel, intégral et dérivé.

Les fluctuations de pression, inférieures à 5 g/cm^2, correspondent à moins de $\pm$ 0,013 K pour l'hydrogène.

Ce système permet en pratique de travailler à une température très stable hors flux ($\Delta T < 0,02$ K) entre 17 K et 25 K environ pour un bain d'hydrogène. Le courant d'irradiation est limité par la faible circulation de fluide au niveau des fenêtres d'irradiation de la queue (voir figure 71).

A.III.3 - Dispositif expérimental à 4 K (expérience Cu 3)

Nous avons mis au point, pour irradier et mesurer à 4 K, un ensemble (figure 72) qui est composé d'un cryostat standard à garde d'azote fourni par Cryophysics et d'une queue d'irradiation du système VINKAC protégée par un écran en cuivre refroidi par la garde du cryostat ; le tout est raccordé à l'extension de l'accélérateur.

Nous avons en fait utilisé le dispositif VINKAC pour remplir la garde du cryostat avec de l'hydrogène liquide et la maintenir, ainsi que l'écran, vers 20 K. Ce système a le double avantage d'éviter les risques d'explosion liés à l'utilisation de l'azote et d'améliorer sans doute les performances du cryostat en limitant les pertes par rayonnement de l'écran.

Malgré cela la consommation en hélium liquide de l'ensemble est très élevée en cours d'irradiation : environ 5 l/heure contre moins de 0,4 l/heure hors flux (notons au passage qu'une telle consommation en flux, représentant une puissance inférieure à 4 Watts, passerait pratiquement inaperçue sur le système VINKAC à 20 K). Cette consommation s'explique par le fait que nos expériences

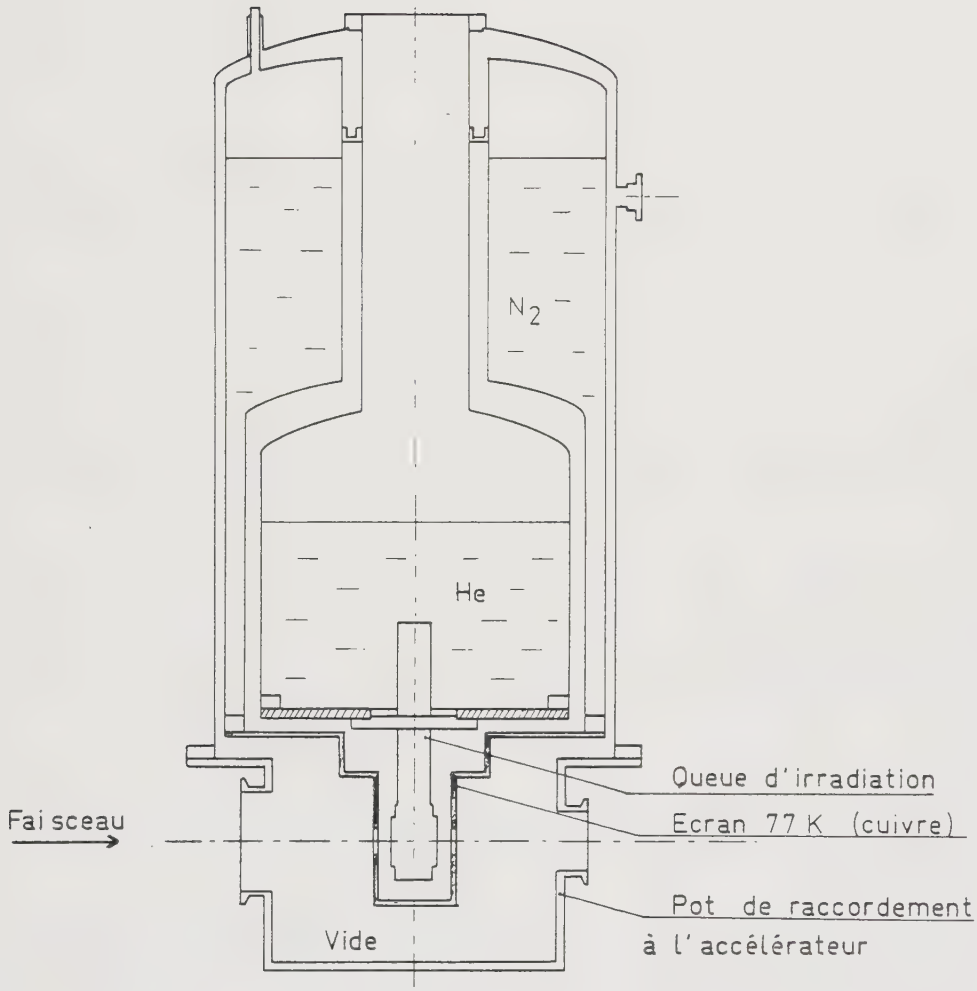


Figure 72 - Ensemble cryostat + queue d'irradiation à l'hélium liquide.

nécessitent un faisceau d'électrons étendu (4 mm x 12 mm) ; les électrons sont donc largement diffusés sur les parois de la queue et y déposent leur énergie.

De plus, la chaleur de vaporisation de l'hélium est moins importante que celle de l'hydrogène et ceci s'ajoute à la faible circulation de fluide au niveau des fenêtres pour limiter l'apport d'énergie cryogénique et donc le courant d'irradiation acceptable.

Pour ces raisons, les doses d'irradiation atteintes sont moins élevées à 4 K qu'à 20 K !

A.III.4 - Les recuits isochrones

Un "sabre de recuit" visible sur la figure 2 guide la capsule d'irradiation pour faciliter son introduction dans la queue du cryostat. Sa partie basse, qui baigne dans le fluide, porte deux fours isolés thermiquement du liquide par le vide. Les recuits isochrones se font à l'intérieur de la cloche à plongeur ainsi formée. Dans ces conditions la température d'un recuit, maintenue par une régulation Cryogenic Research, est en général stable à 0,1 K près. Ce dispositif, inspiré du système de R.R. CONTE / 61 /, a été utilisé pour les expériences de Cu 1 et Cu 2 (voir § suivant), et pour les recuits du molybdène au-delà de 25 K.

Toutefois, pour l'expérience à l'hélium liquide, le sabre qui apportait des pertes trop élevées (par les fils d'alimentation des fours et sa forte section d'acier inox) a été supprimé. Pour les différents recuits, l'échantillon a alors été remonté progressivement au-dessus du liquide. La température, mesurée par deux thermocouples et la résistance du témoin,est alors moins stable.

A.III.5 - Les échantillons de cuivre (mesures d'élastorésistivité)

Nos échantillons de cuivre sont tirés de la même bobine que ceux de VON STEBUT. Il s'agit de fil M.R.C. de diamètre 138 µ environ. D'après l'analyse par spectrométrie de masse à étincelles, il contient principalement (en concentration atomique) :

S	:	$3 \ .10^{-6}$
Fe	:	$1,5.10^{-6}$
Al	:	$1 \ .10^{-6}$
Si	:	$1 \ .10^{-6}$
autres	:	$< 0,8.10^{-6}$

soit une concentration d'impuretés inférieure à 10^{-5}.

Les échantillons Cu 1 et Cu 2 sont bruts de tréfilage. Coupés de la bobine ils n'ont subi qu'un polissage chimique de leur surface.

L'échantillon Cu 3 a été recuit pendant 2 heures vers 700°C dans un vide ionique d'environ 10^{-8} torr.

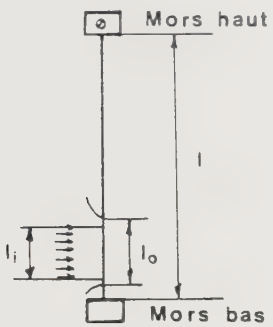
Il a ensuite subi une faible pré-irradiation dans le réacteur TRITON à une température comprise entre 50°C et 150°C. Cette pré-irradiation avait pour but d'épingler les dislocations et donc augmenter la limite d'élasticité de l'échantillon. La résistivité induite par cette irradiation est de 0,5 nΩcm environ, donc négligeable devant celle que nous ajoutons par irradiation aux électrons.

La résistivité résiduelle de nos fils de cuivre est de 1,9 nΩcm après recuit. Elle est d'environ 4,5 à 5 nΩcm pour les échantillons bruts, ce qui correspond, d'après RIDER et FOXON / 62 /, à $\cong 10^{10}$ dislocations/cm^2 dans l'état brut.

ANNEXE IV

DEPOUILLEMENT PARTICULIER DES EXPERIENCES AUX ELECTRONS

Le montage est schématisé sur la figure 73 ci-contre :



L'échantillon a une section s constante sur toute sa longueur. La longueur totale l est soumise à la contrainte, tandis que de la longueur l_o comprise entre les potentiels, seule la partie l_i est irradiée. on pose :

$$l_{n.i.} = l_o - l_i$$

La résistance R_X mesurée est :

$$R_X = \rho_o \frac{l_{n.i.}}{s} + \rho_i \frac{l_i}{s} = R_o + R_i$$

Figure 73

On définit les coefficients :

$$K_o = \frac{1}{\varepsilon} \frac{\delta R_o}{R_o} \quad \text{du métal non irradié}$$

$$K_i = \frac{1}{\varepsilon} \frac{\delta R_i}{R_i} \quad \text{de la partie irradiée}$$

Sous la contrainte σ, les zones l_i et $1-l_i$ se déforment :

$$\delta l_i = l_i \frac{\sigma}{E_i} \quad \text{et} \quad \delta(1-l_i) = (1-l_i) \frac{\sigma}{E_o}$$

soit

$$\delta l = l \frac{\sigma}{E_o} + l_i \sigma \left(\frac{1}{E_i} - \frac{1}{E_o}\right)$$

Le module apparent $E_{app.}$ mesuré est tel que : $\frac{1}{E_{app.}} = \frac{1}{\sigma} \frac{\delta l}{l}$

soit $\frac{1}{E_{app.}} = \frac{1}{E_o} + \frac{l_i}{l} \left(\frac{1}{E_i} - \frac{1}{E_o}\right) = \frac{1}{E_o} \left(1 + \frac{l_i}{l} \left(\frac{E_o - E_i}{E_i}\right)\right)$

ou, les variations de E restant faibles :

$$E_{app.} \cong E_o \left(1 + \frac{l_i}{l} \frac{\Delta E_o}{E_o}\right) \quad \text{en posant} \quad \frac{\Delta E_o}{E_o} = \frac{E_i - E_o}{E_o}$$

D'après VON STEBUT / 13 /, les variations maximales $\frac{\delta E}{E}$ sont de - 10 % (sauf au tout début de l'irradiation).

Dans notre cas : $l \cong 60$ mm et $l_i \cong 15$ mm.

Les variations mesurées sur $E_{app.}$ sont donc inférieures à 2,5 %, c'est-à-dire en dessous de la limite de précision de notre machine.

Le coefficient K apparent mesuré est :

$$K_{app.} = \frac{1}{\varepsilon} \frac{\delta R_X}{R_X}$$

or $R_X = R_o + R_i$

donc $\delta R_X = \delta R_o + \delta R_i$

soit $\delta R_X = K_o R_o \varepsilon_o + K_i R_i \varepsilon_i$

avec $\varepsilon_o = \frac{\delta l_{n.i.}}{l_{n.i.}} = \frac{\sigma}{E_o}$, $\varepsilon_i = \frac{\delta l_i}{l_i} = \frac{\sigma}{E_i}$

et $\varepsilon = \frac{\delta l}{l} = \frac{\sigma}{E_{app.}}$

Le coefficient $K_{app.}$ vaut alors :

$$K_{app.} = K_o \frac{R_o}{R_X} \left(1 + \frac{l_i}{l} \frac{\Delta E}{E}\right) + K_i \frac{R_i}{R_X} \left(1 - \frac{l - l_i}{l} \frac{\Delta E}{E}\right)$$

et le coefficient K_i de la zone irradiée :

$$K_i = K_{app.} \frac{R_X}{R_i} \left(1 + \frac{l - l_i}{l} \frac{\Delta E}{E}\right) - K_o \frac{R_o}{R_i} \left(1 + \frac{\Delta E}{E}\right)$$

Les corrections apportées au coefficient $K_{app.}$ pour obtenir K_i sont toujours faibles. En effet, d'après VON STEBUT, après irradiation, on doit avoir $\frac{\Delta E}{E} \cong - 5\ \%$ et $\frac{\Delta E}{E}$ varie entre - 5 % et 0 au cours des recuits isochrones. Nous ne pouvons mesurer $\frac{\Delta E}{E}$ mais sa valeur est suffisamment faible pour que nous puissions le négliger. En effet, une variation $\frac{\Delta E}{E}$ de - 5 % entraîne une modification de K_i de :

$$\frac{\Delta K_i}{K_i} = \frac{1}{K_i} \left(K_{app.} \frac{R_X}{R_i} \frac{1-1_i}{1} - K_o \frac{R_o}{R_i}\right) \frac{\Delta E}{E} \quad \text{de} \quad - 3\ \% \text{ à } - 4\ \%$$

qui se traduit (puisque $\frac{\Delta E}{E}$ est négatif) par une baisse de K_i. On écrit donc :

$$K_i \cong K_{app.} \frac{R_X}{R_i} - K_o \frac{R_o}{R_i}$$

et

$$K_i > \left(1 + \frac{\Delta E}{E}\right) \left(K_{app.} \frac{R_X}{R_i} - K_o \frac{R_o}{R_i}\right)$$

ANNEXE V

ENERGIES D'ACTIVATION DETERMINEES PAR LA METHODE DES CHANGEMENTS DE PENTE - CALCUL D'ERREUR

La méthode des pentes est décrite par la figure 39 du III.4.2.2 (page 66 Avec les mêmes notations, W/k est déterminé par :

$$W/k = \ln (p_1/p_2) / (1/T_1 - 1/T_2)$$

$$= T_1T_2 \ln (p_1/p_2) / (T_2-T_1)$$

Soit

$$|\Delta W/W| < |\Delta T_1/T_1| + |\Delta T_2/T_2| + |\Delta \ln(p_1/p_2)/\ln (p_1/p_2)| + |\Delta\delta T/\delta T|$$

Or $$|\Delta T_i/T_i| < 2.10^{-2} / 20 = 10^{-3}$$

et $$|\Delta(\delta T)/\delta T| < 4.10^{-2} / \delta T$$

où δT vaut environ 0,6 ou 0,7 K.

Donc les $|\Delta T_i/T_i|$ sont négligeables et l'erreur sur la température se résume au terme $|\Delta\delta T/\delta T|$.

D'autre part :

$$|\Delta \ln(p_1/p_2)| = |\ln(p_1/p_2 + \Delta(p_1/p_2)) - \ln(p_1/p_2)|$$

$$= |\ln (1 + \Delta(p_1/p_2)/(p_1/p_2))| < |\Delta p_1/p_1| + |\Delta p_2/p_2|$$

Les erreurs sur les pentes p_i et p_f et l'écart de température δT déterminent alors les erreurs qui figurent dans les Tableaux IX, X et XI.

Pour la détermination de l'erreur ΔT dans les expériences à "basse" température (recuits sous pression), nous avons opéré de la façon suivante : sur la mesure de pression la précision (relative, entre 2 mesures) est certainement

meilleure que 10 g/cm^2 ; nous obtenons alors la température par la courbe p(T), dont la pente nous donne l'erreur, qui varie de 0,013 K à 26 K à 0,036 K à 20 K.

Pour les isothermes de Mo 4, nous obtenons le calcul d'erreur suivant :

T	22,34	22,94	23,48	24,48
ΔT	0,023	0,021	0,019	0,016
$\frac{\Delta(\partial T)}{\partial T}$	7,3 %	7,4 %	3,5 %	
	3,7 %	2,4 %		
	1,8 %			

ANNEXE VI

COURBES DE RELAXATION

Mo 10	figures	A1	22,95 K	σ_{max}
		A2	"	0
		A3	23,50 K	σ_{max}
		A4	"	0
		A5	23,77 K	σ_{max}
Mo 11	figures	A6	22,95 K	σ_{max} et 0
		A7	23,50 K	σ_{max}
		A8	24,00 K	σ_{max} et 0
		A9	24,61 K	σ_{max} et 0
		A10	"	σ_{max} et $\sigma_{max}/2$
Mo 12	figures	A11	21,96 K et 22,20 K	σ_{max} et 0
		A12	22,35 K	σ_{max} et 0
		A13	22,93 K	σ_{max}
		A14	"	σ_{max} et $\sigma_{max}/2$
		A15	24,61 K	ensemble et premiers points σ_{max}

La courbe tracée sur les points expérimentaux est l'exponentielle C (1 - exp (- xt)), ajustée par une méthode des moindres carrés.

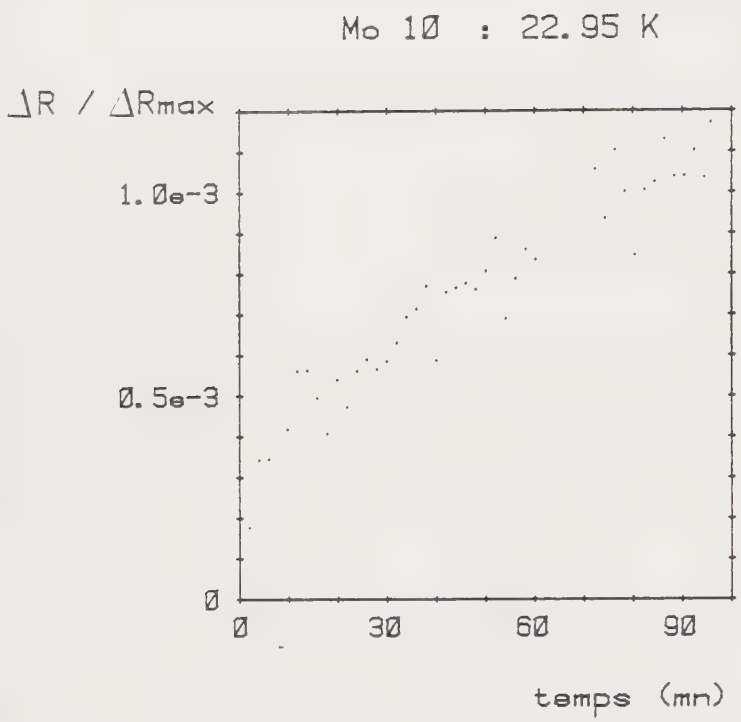


Figure A1

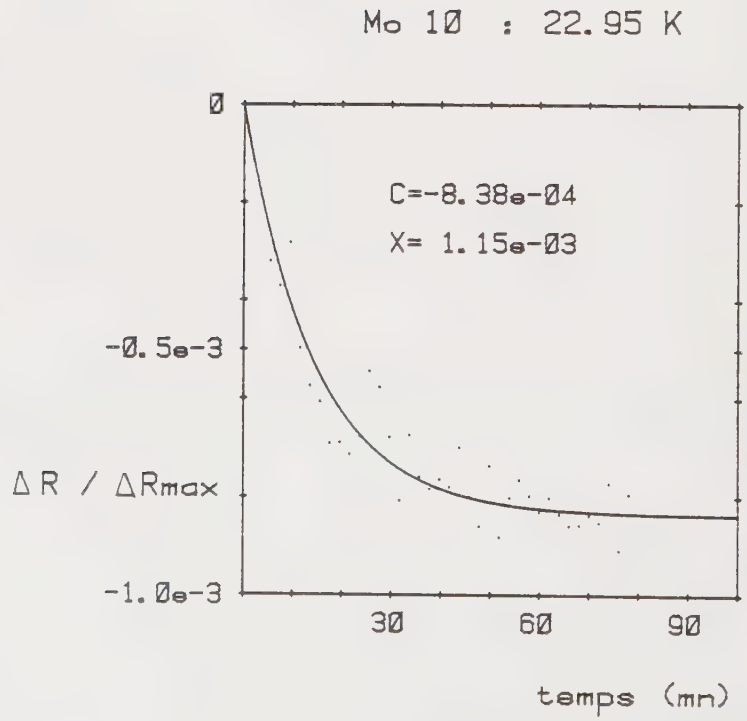


Figure A2

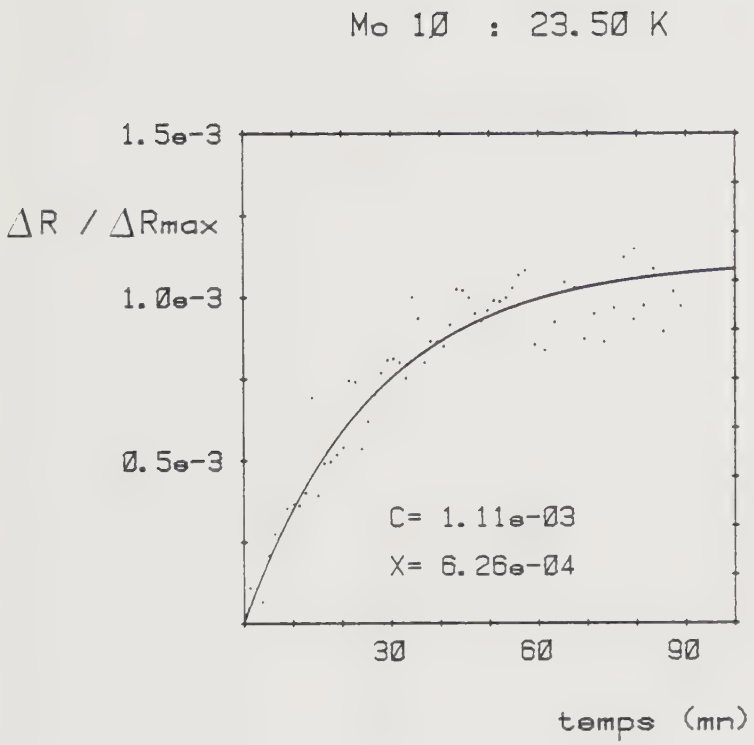


Figure A3

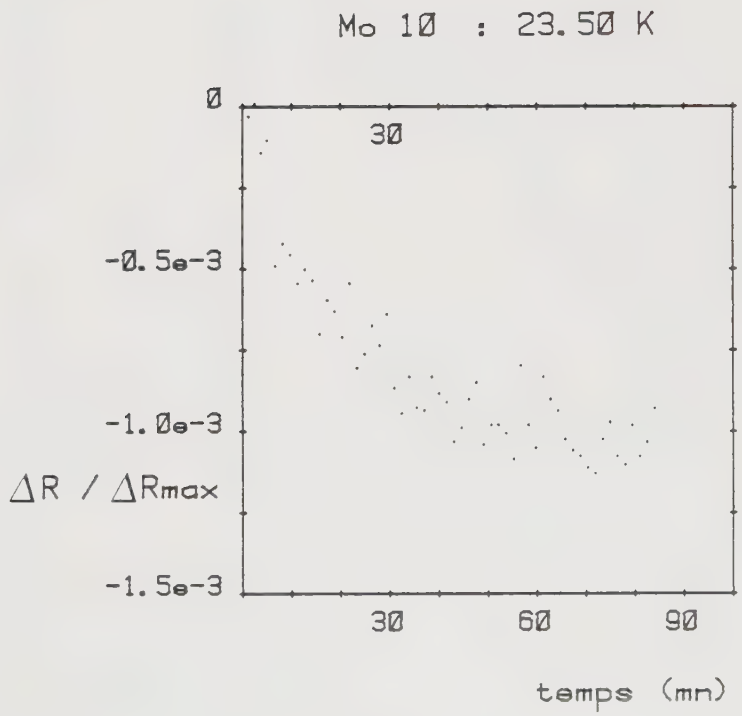


Figure A4

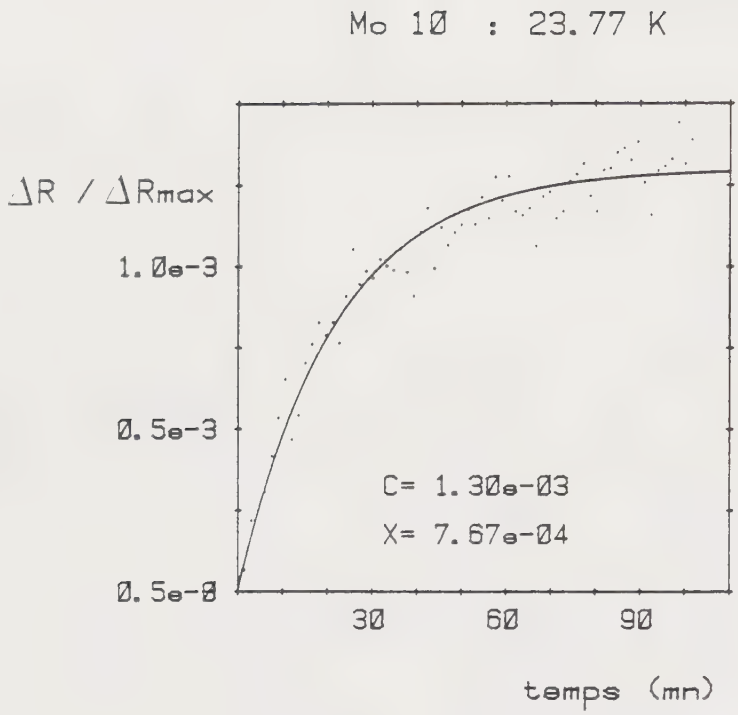


Figure A5

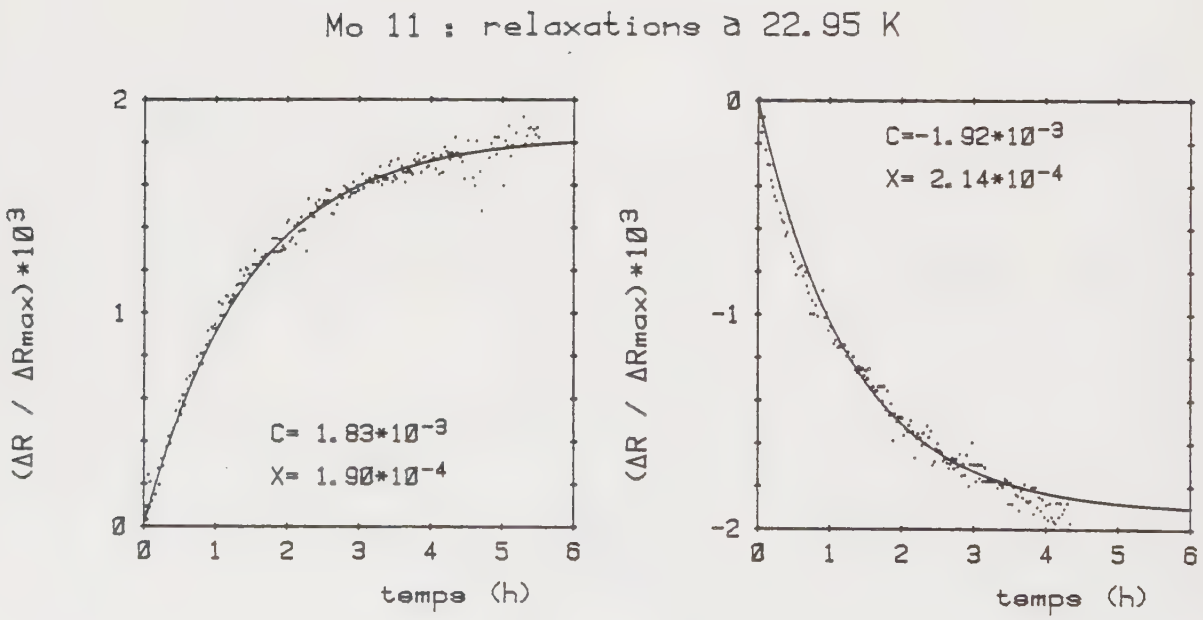


Figure A6

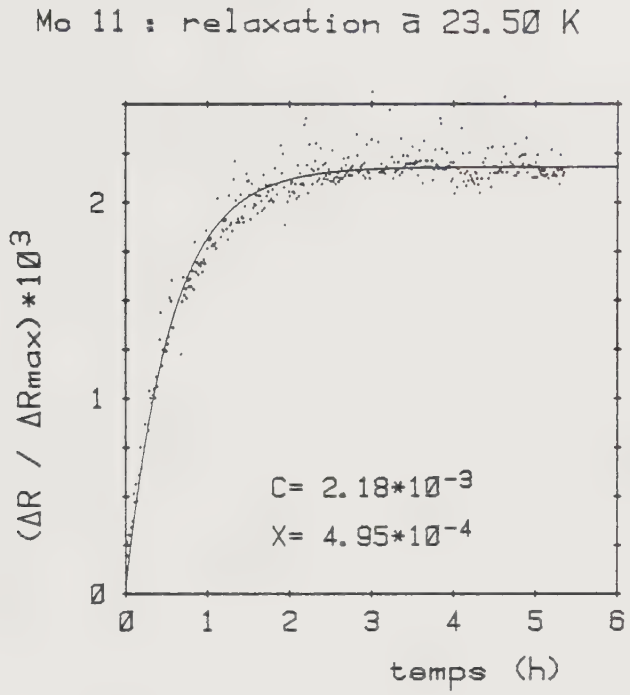


Figure A7

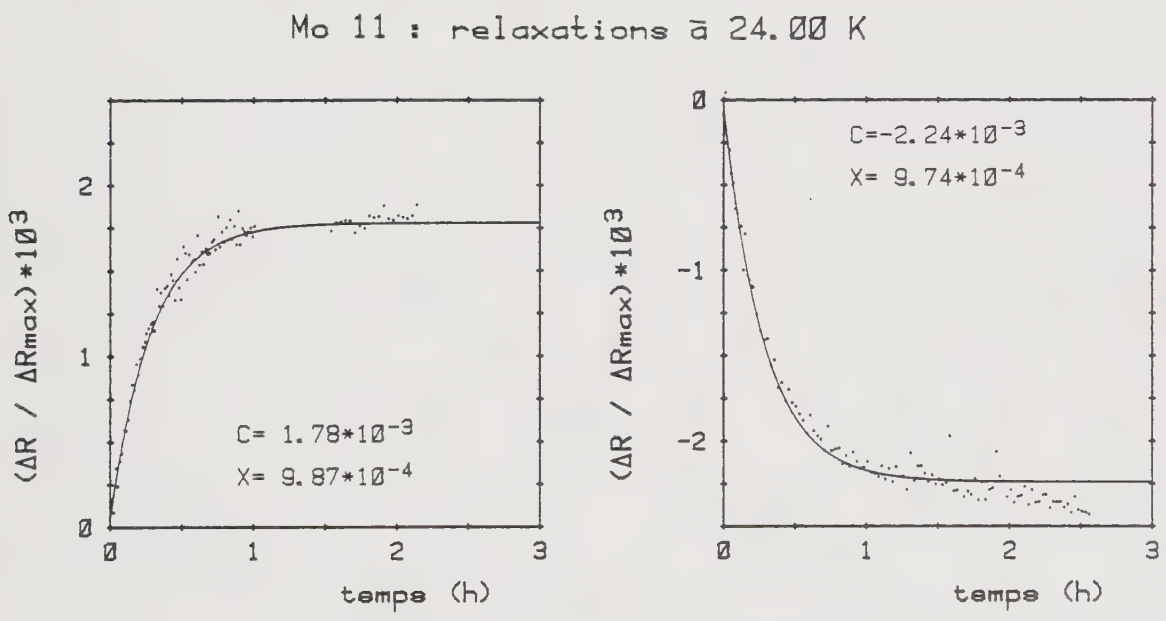


Figure A8

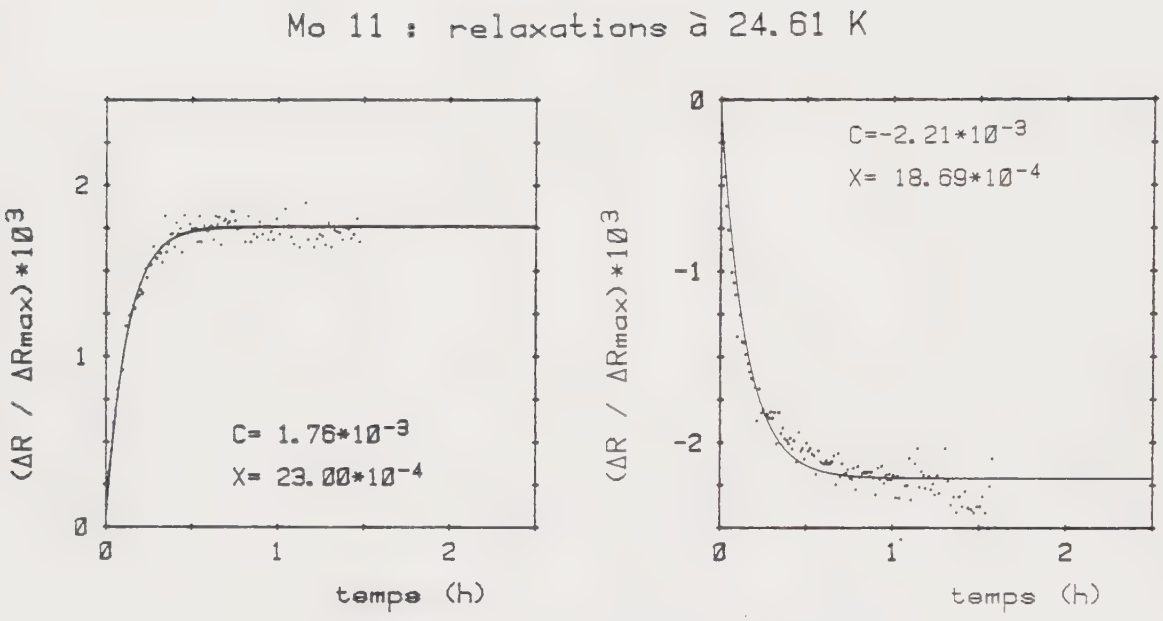


Figure A9

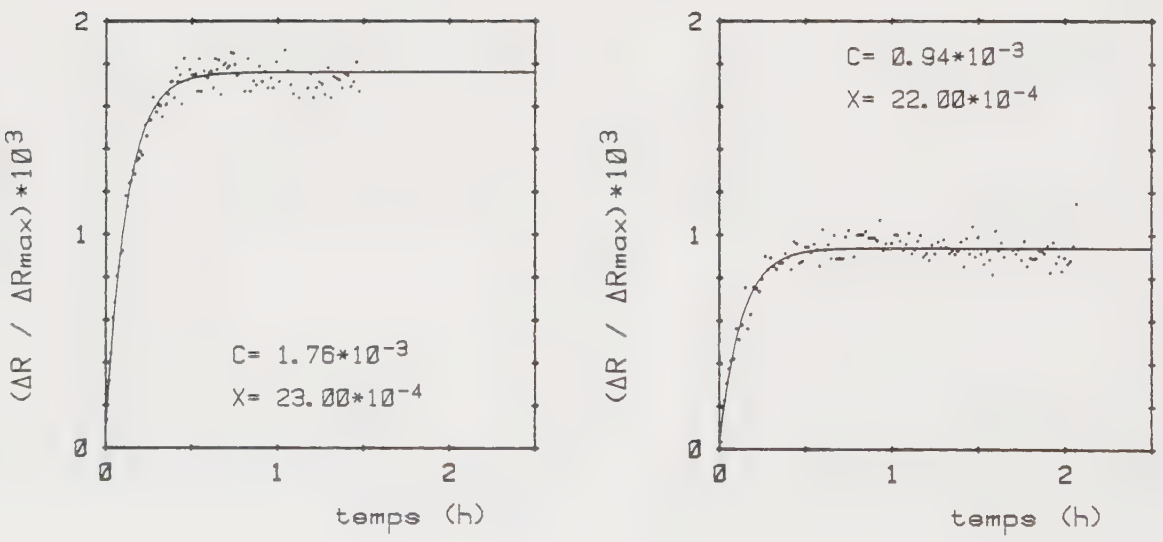


Figure A10

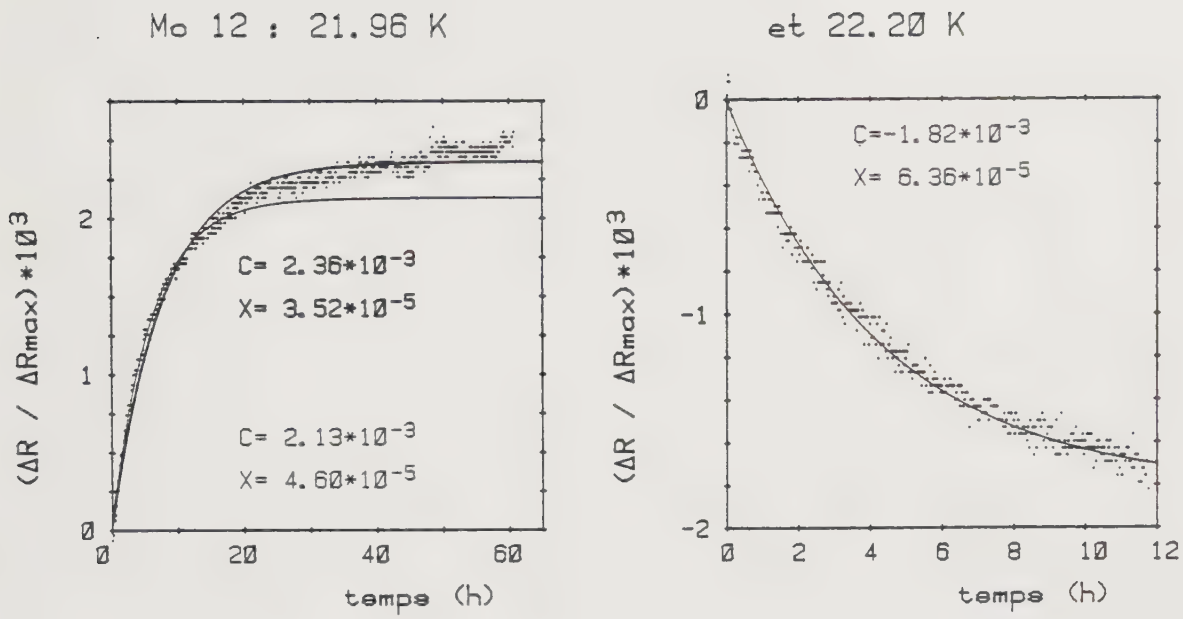


Figure A11

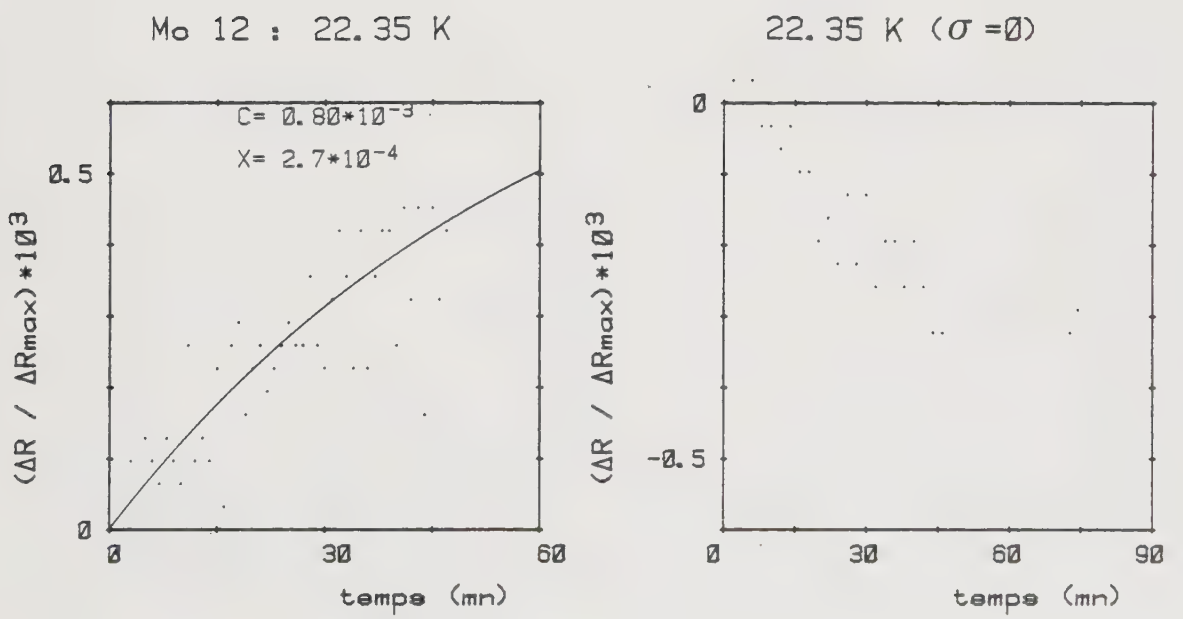


Figure A12

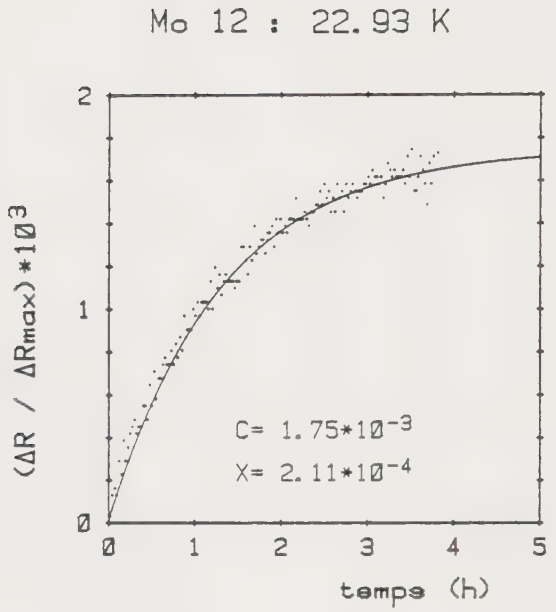


Figure A13

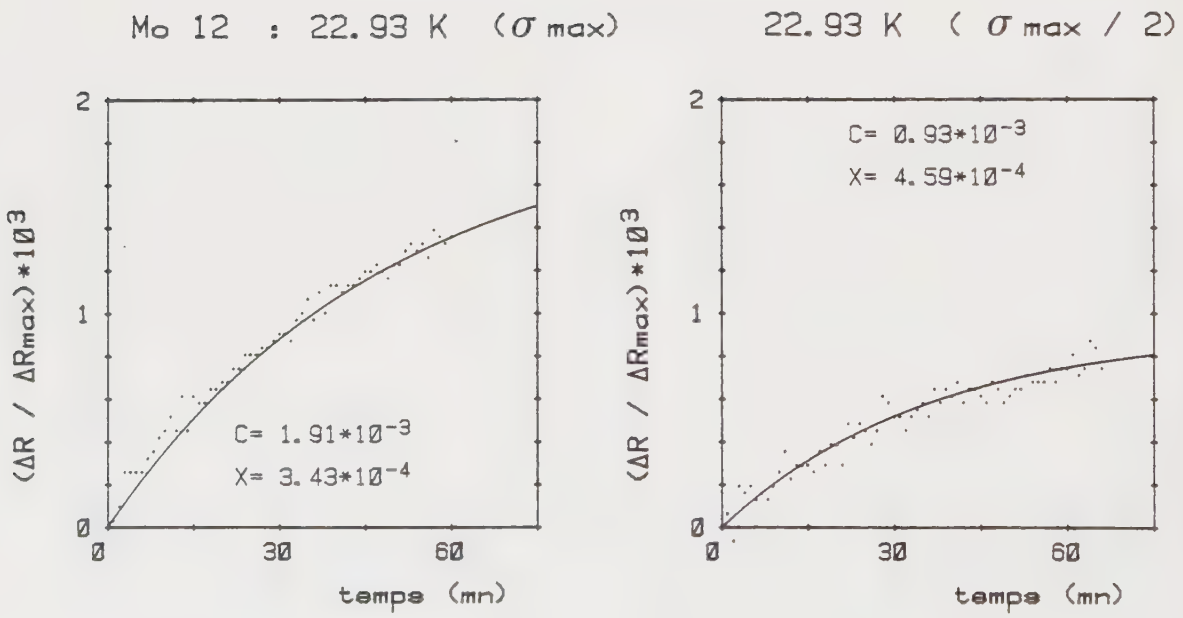


Figure A14

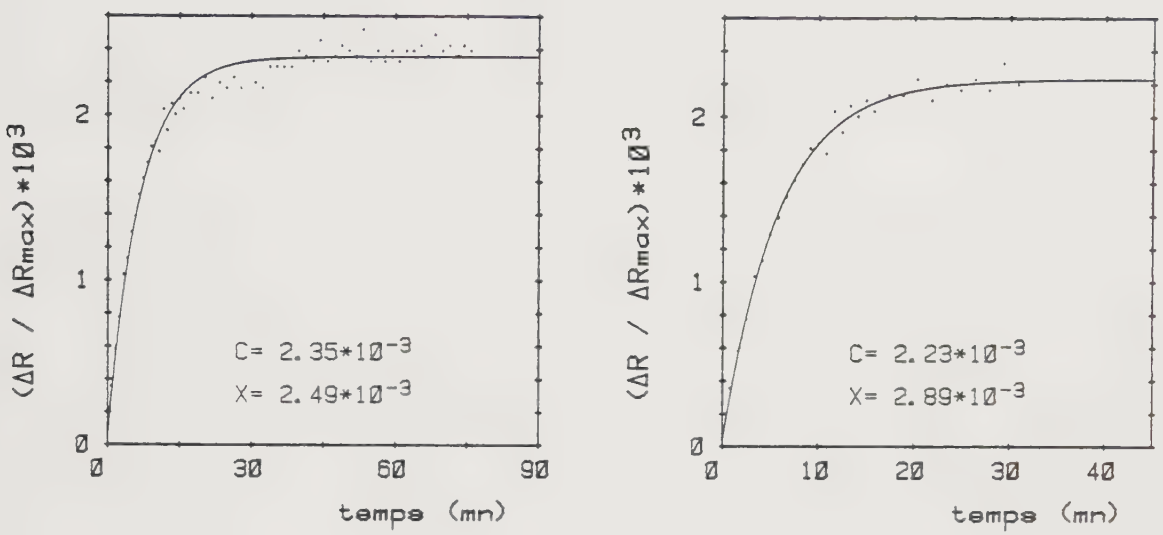

Mo 12 : relaxation à 24.61 K
(ΔR / ΔRmax)*10³
C= 2.35*10⁻³
X= 2.49*10⁻³
temps (mn)
(ΔR / ΔRmax)*10³
C= 2.23*10⁻³
X= 2.89*10⁻³
temps (mn)

Figure A15

ANNEXE VII

DECOMPOSITION DES COURBES DE RELAXATION EN DEUX EXPONENTIELLES

Comme nous l'avons vu au Chapitre IV (§ 3.2), certaines courbes de relaxation sont mal décrites par une seule exponentielle. Nous avons donc tenté d'y ajuster une somme d'exponentielles comme JACQUES et al. / 50 / et comme MIZUBAYASHI et al. / 51 /.

A.VII.1 - MÉTHODE

Je me suis limitée à une décomposition en deux exponentielles des courbes. De plus, plutôt que de faire un calcul brutal de moindres carrés dans un "plan" des constantes de temps, j'ai préféré opérer de la façon suivante (qui suppose la présence de constantes de temps nettement différentes) :

- j'ajuste une exponentielle C_1 (1 - exp (- x_1 t)) sur les derniers points de la courbe : j'obtiens ainsi l'exponentielle "lente", en supposant l'autre exponentielle saturée. Pour les courbes bien décrites par une exponentielle (Mo 11 : 24,00 K) la constante de temps obtenue sur les derniers points est très proche de celle obtenue sur l'ensemble des points.

- j'ajuste ensuite une exponentielle sur la différence entre la courbe expérimentale et l'exponentielle (C_1, x_1) : c'est l'exponentielle "rapide" (C_2, x_2).

A.VII.2 - RÉSULTATS

La plupart des courbes sont bien décrites par une seule exponentielle, et on le vérifie par la méthode ci-dessus en constatant que la constante de temps obtenue est la même au début et à la fin de la courbe.

Pour quelques courbes, on peut mettre en évidence une exponentielle lente, et souvent trouver aussi l'exponentielle rapide. Les résultats sont résumés dans le tableau ci-dessous :

T°	21,96 Mo 12	22,93 Mo 12	24,61 Mo 12	22,95 Mo 11 (σ= 0)	22,95 Mo 11
$C_1 \times 10^3$	1,34	1,82	1,21	1,86	1,69
$x_1 \times 10^4$	0,168	2,08 ?	14,0	1,25 à 1,65	1,46
τ_1	≅ 16 h 30	80 mn	712 s	101 à 133 mn	114 mn
$C_2 \times 10^3$	1,24	-	1,22	0,24 à 0,35	0,28
$x_2 \times 10^4$	0,785	-	53,9	19,8 à 25,4	-
τ_2	≅ 3 h 30	-	186 s	6 mn 30 à 8 mn	-
Constantes τ_3 et τ_4 de JACQUES / 50 / (extrapolées)	τ_3 ≅ 13 h τ_4 ≅ 4 h	2 à 3 h 42 mn	∿ 800 s ∿ 130 s	2 à 3 h 42 mn τ_2 ≅ 7 mn	- - -

On remarque sur ce tableau :

- que lorsque la décomposition est possible, et compte tenu de la forte imprécision des constantes ainsi obtenues, les résultats sont très proches de ceux de JACQUES (relaxations 3 et 4).
- que les amplitudes C_1 et C_2, dont le rapport donne les proportions relatives des deux processus en jeu, sont toujours du même ordre pour une même expérience :

$$C_1 \cong C_2 \cong 1,3 \quad \text{pour Mo 12}$$

$$C_1 \cong 1,7 \text{ et } C_2 \cong 0,3 \quad \text{pour Mo 11}$$

La différence des proportions relatives des deux processus entre les deux expériences ($C_1/C_2 \cong 1$ pour Mo 12 et $C_1/C_2 \cong 6$ pour Mo 11) peut s'expliquer par une différence de température au moment du pré-recuit vers 28 K (un des processus étant partiellement éliminé à cette température).

A.VII.3 - Conclusion

L'analyse de certaines courbes en deux exponentielles confirme l'hypothèse que nos résultats seraient une "moyenne" des relaxations 3 et 4 de JACQUES et al. / 50 /.

La différence des proportions des deux processus entre les expériences Mo 11 et Mo 12 peut venir :

- soit d'un pré-recuit initial à des températures différentes si un défaut responsable d'un des processus disparaît à cette température (environ 28 K),
- soit d'une légère différence d'orientation entre les deux cristaux au moment de l'irradiation, ce qui créerait, d'après BIGET et al. / 30 /, des proportions différentes des divers interstitiels (mais la faible différence d'orientation pourrait difficilement expliquer le rapport de 1 à 6 entre Mo 11 et Mo 12).

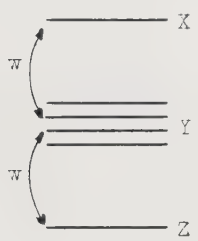
Il serait nécessaire pour résoudre ces questions (et mieux séparer éventuellement les divers processus en jeu) d'effectuer des expériences approchant de celles de traînage mécanique, avec toute une série de "pré-recuits" à des températures de 24 K à 40 K. On pourrait ainsi déterminer la température d'élimination des divers processus (cependant ces expériences seraient assez délicates car après un pré-recuit à 24 K par exemple on risque d'observer vers 22 K une guérison des défauts qui perturberait la mesure).

ANNEXE VIII

MODELE CINETIQUE : CALCULS

A.VIII.1 - Ecarts d'énergie égaux

Le système d'équations (2) du paragraphe V.1.2 devient, si l'on élimine Y (par X + Y + Z = N) :



$$\frac{1}{K}\dot{X} = -(4\,e^{+} + e^{-})\,X - e^{-}\,Z + e^{-}\,N$$

$$\frac{1}{K}\dot{Z} = -e^{+}\,X - (4\,e^{-} + e^{+})\,Z + e^{+}\,N$$

La solution de l'équation "sans second membre" (c'est-à-dire sans les constantes $e^{-}N$ et $e^{+}N$) est une combinaison linéaire de deux exponentielles du type e^{xt} dont les coefficients x sont donnés par l'équation aux valeurs propres :

$$\left[(4\,e^{+} + e^{-}) + x\right] \times \left[(4\,e^{-} + e^{+}) + x\right] - 1 = 0$$

soit $x^2 + 5\,x\,(e^{+} + e^{-}) + 4\,(e^{+2} + e^{-2} + 4) = 0$;

le discriminant en est : $\Delta = 25\,(e^{+2} + e^{-2} + 2) - 16\,(e^{+2} + e^{-2} + 4)$

$\Delta = 9\,(e^{+2} + e^{-2}) - 14$ est toujours positif, et les coefficients sont tous deux négatifs :

$$x \pm = \left[-5\,(e^{+} + e^{-})/2 \pm \sqrt{\Delta}/2\right] K$$

Si on pose : $a/K = 5\,(e^{+} + e^{-})/2 + \sqrt{\Delta}/2$

et $b/K = 5\,(e^{+} + e^{-})/2 - \sqrt{\Delta}/2$

X et Z peuvent s'écrire sous la forme :

$$X = \lambda\,(1 - e^{-at}) + \mu\,(1 - e^{-bt}) + N/6$$

$$Z = 1\,(1 - e^{-at}) + m\,(1 - e^{-bt}) + N/6$$

On obtient les coefficients λ, μ, 1, m en écrivant des conditions aux limites :

$$\begin{cases} X_\infty = \lambda + \mu + N/6 \\ \dot{X}_o = \lambda\, a + \mu\, b \end{cases}$$

$$\begin{cases} Z_\infty = 1 + m + N/6 \\ \dot{Z}_o = 1\, a + m\, b \end{cases}$$

Ces deux systèmes d'équations déterminent λ, μ, 1, m en fonction des valeurs limites que nous avons calculées en V.1.2.

A.VIII.2 - Pour des écarts d'énergie différents

Le nouveau système d'équations s'écrit :

$$\begin{cases} \dot{X} = -8\,\nu\, e^{w_2/kT} X + 2\,\nu\, e^{-w_2/kT} Y \\ \dot{Y} = 8\,\nu\, e^{w_2/kT} X - 2\,\nu\,(e^{+w_1/kT} + e^{-w_2/kT})\, Y + 8\,\nu\, e^{-w_1/kT} Z \\ \dot{Z} = 2\,\nu\, e^{w_1/kT} Y - 8\,\nu\, e^{-w_1/kT} Z \end{cases} \qquad (1)$$

Notons de la même façon que précédemment :

$$K = 2\,\nu \qquad e_1^{\pm} = e^{\pm w_1/kT}$$

$$e_2^{\pm} = e^{\pm w_2/kT}$$

On obtient :

$$\begin{cases} \frac{1}{K}\dot{X} = -4\, e_2^{+} X + e_2^{-} Y \\ \frac{1}{K}\dot{Y} = 4\, e_2^{+} X - (e_2^{-} + e_1^{+})\, Y + 4\, e_1^{-} Z \\ \frac{1}{K}\dot{Z} = e_1^{+} Y - 4\, e_1^{-} Z \end{cases} \qquad (2)$$

Montrons que les résultats du V.1.2 sont peu modifiés dans ce modèle plus compliqué :

i) initialement (au temps t = 0 où on applique la contrainte) :

$$\left|\begin{array}{l} \frac{1}{K}\dot{X}_o = (-4\,e_2^{+} + 4\,e_2^{-})\,N/6 \\ \frac{1}{K}\dot{Y}_o = (4\,e_2^{+} - 4\,e_2^{-} - 4\,e_1^{+} + 4\,e_1^{-})\,N/6 \\ \frac{1}{K}\dot{Z}_o = (4\,e_1^{+} - 4\,e_1^{-})\,N/6 \end{array}\right.$$

Dans le modèle précédent, les pentes initiales $\dot{X}_o$ et $\dot{Z}_o$ étaient égales et opposées lorsque w/kT était faible.

Ceci n'est plus vérifié. Lorsque w_1 et w_2 sont petits devant kT, en posant $\varepsilon_1 = w_1/kT$ et $\varepsilon_2 = w_2/kT$, on obtient :

$$\left|\begin{array}{l} \frac{1}{K}\dot{X}_o \cong -8\,\varepsilon_2\,N/6 \\ \frac{1}{K}\dot{Y}_o \cong +N\,(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)/3 \\ \frac{1}{K}\dot{Z}_o \cong 4\,N\,\varepsilon_1/3 \end{array}\right.$$

D'où pour la résistivité :

$$\dot{\rho}_o \cong 4\,N\,\frac{K}{3} \times \left[-\varepsilon_2\,\rho_{\perp} + (\varepsilon_2 - \varepsilon_1)\,\rho_{60°} + \varepsilon_1\,\rho_{//}\right]$$

Si on admet que les écarts en énergie w_1 et w_2 (donc ε_1 et ε_2) sont proportionnels à la contrainte σ, la pente initiale de la résistivité est encore proportionnelle à la contrainte.

ii) au bout d'un temps infini :

Les conditions d'équilibre ($\dot{X} = \dot{Y} = \dot{Z} = 0$) donnent :

$$X = e_2^{-2}\,Y/4 \quad , \quad Z = e_1^{+2}\,Y/4 \quad \text{et} \quad X + Y + Z = N$$

soit $\quad X_\infty = \frac{N}{D}\,e_2^{-2} \qquad Y_\infty = \frac{4N}{D} \qquad Z_\infty = \frac{N}{D}\,e_1^{+2}$

avec $\quad D = e_2^{-2} + e_1^{+2} + 4$

Etudions les deux cas extrêmes :

ε_1 et $\varepsilon_2 \ll 1$:

$$X_\infty \cong \frac{N\,(1 - 2\,\varepsilon_2)}{6 + 2\,(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)} \cong \frac{N}{6}\left(1 - \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{3} - 2\,\varepsilon_2\right)$$

$$Y_\infty \cong 2\,\frac{N}{3}\left(1 - \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{3}\right)$$

$$Z_\infty \cong \frac{N}{6}\left(1 - \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{3} + 2\,\varepsilon_1\right)$$

D'où pour la résistivité à saturation :

$$\frac{\rho_\infty - \rho_o}{\rho_o} \cong \frac{N}{6\,\rho_o}\left[-\rho_{//}\,\frac{\varepsilon_1 + 5\,\varepsilon_2}{3} + \rho_\perp\,\frac{5\,\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{3} - 4\,\rho_{60}\,\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{3}\right]$$

En admettant toujours que w_1 et w_2 sont proportionnels à σ, on a une valeur à saturation proportionnelle à σ et inversement proportionnelle à T.

ε_1 et $\varepsilon_2 \gg 1$ (soit w_1 et $w_2 > 5$ meV)

Dans ce cas $X_\infty = Y_\infty = 0$ et $Z_\infty = N$

et $\rho_\infty = N\,\rho_{//}$; l'état final ne dépend plus de la valeur de la contrainte.

iii) expérience inverse

Partons d'un état saturé et supprimons la contrainte. Les pentes initiales sont données par le système (2) (avec $w_1 = w_2 = 0$) :

$$\left|\begin{array}{l} \frac{1}{K}\,\dot{X}_o = -4\,X_\infty + Y_\infty \\ \frac{1}{K}\,\dot{Y}_o = 4\,X_\infty - 2\,Y_\infty + 4\,Z_\infty \\ \frac{1}{K}\,\dot{Z}_o = Y_\infty - 4\,Z_\infty \end{array}\right.$$

soit pour ε_1 et $\varepsilon_2 \ll 1$:

$$\left|\begin{array}{l} \frac{1}{K}\,\dot{X}_o \cong 4\,N\,\varepsilon_2/3 \\ \frac{1}{K}\,\dot{Y}_o \cong 4\,N\,(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)/3 \\ \frac{1}{K}\,\dot{Z}_o \cong -4\,N\,\varepsilon_1/3 \end{array}\right.$$

les pentes sont bien égales et opposées à celles observées à la mise en place de la contrainte (comme dans le modèle précédent).

iv) constantes de temps (résolution du système) :

Par élimination de Y dans le système (2) on obtient deux équations linéaires en X et Z, un peu plus compliquées que celles du modèle précédent, mais qui ont la même forme et donc des solutions du même type :

$$X = \lambda (1 - e^{-at}) + \mu (1 - e^{-bt}) + N/6$$

etc...

Les solutions sont donc encore du type exponentiel.

A.VIII.3 - REDUCTION A UNE EXPONENTIELLE

Montrons que, lorsque les écarts d'énergie sont faibles et égaux ($w_1 = w_2 = w$), les populations X, Y, Z et donc la résistivité ρ se réduisent à une seule exponentielle.

La solution générale est de la forme (p. 167) :

$$X = \lambda (1 - e^{-at}) + \mu (1 - e^{-bt}) + N/6$$

où pour ε petit $\quad a \cong 6K + \theta(\varepsilon^2)$
et $\quad b \cong 4K + \theta(\varepsilon^2)$

($\theta(\varepsilon^2)$ désignant une expression du 2ème ordre au moins en ε)

Si ε est petit, $X_\infty \cong N(1 - 2\varepsilon)/6$ et $\dot{X}_o \cong - 4 N K \varepsilon/3$;
les équations deviennent alors ;

$$\lambda + \mu \cong - N \varepsilon/3$$
$$3\lambda + 2\mu \cong - 2 N \varepsilon/3$$

donc $\mu \cong - N \varepsilon/3$ et $\lambda \cong 0$ (au 1er ordre en ε)

Il ne reste donc au 1er ordre en ε que le terme en $(1 - e^{-bt})$. On vérifie qu'il en est de même pour Z, la population Y restant constante au 1er ordre. La résistivité ρ prend alors aussi une forme exponentielle :

$$\rho(t) - \rho_o = (\rho_\infty - \rho_o)(1 - e^{-bt})$$

Ce résultat n'est pas conservé lorsque les écarts d'énergie sont inégaux ($\varepsilon_1 \neq \varepsilon_2$) ($\lambda$ contient alors une expression au 1er ordre en $(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)$.

ANNEXE IX

DETERMINATION DU POTENTIEL DE PAIRES

Le principe en est exposé au Chapitre V.

Le potentiel est déterminé dans la région moyenne 1 par les constantes élastiques et l'énergie de formation de la lacune. Il est ensuite défini en région 2 ("longues" distances) par des conditions de continuité et en région 3 (potentiel répulsif des courtes distances) par ajustement à un potentiel de type Born-Mayer.

A.IX.1 - En région 1 $(r_c < r < r_j)$

a) Hypothèses

Le potentiel est central. Des conditions d'équilibre nous conduiraient donc aux relations de Cauchy sur les constantes élastiques, qui sont loin d'être vérifiées / 64 /. Le potentiel est donc un potentiel :

1. de déséquilibre
2. central
3. où chaque atome est à un centre de symétrie cubique (pour le cristal parfait !).

b) Relations

Dans ces conditions, on obtient les relations entre constantes élastiques et potentiel / 64 / :

$$C_{\alpha\gamma,\beta\lambda} = [\alpha\beta,\gamma\lambda] + [\beta\gamma,\alpha\lambda] - [\beta\lambda,\alpha\gamma] + (\alpha\gamma,\beta\lambda)$$

avec, dans l'hypothèse 3 précédente :

$$(\alpha\gamma,\beta\lambda) = 0$$

et

$$\left[\alpha\beta,\gamma\lambda\right] = \frac{1}{v_a}\left\{ \delta_{\alpha\beta} \sum_{1kk'} \left[x_\gamma\, x_\lambda\, \psi' \right]_{x\left(^1_{kk'}\right)} + 2 \sum_{1kk'} \left[x_\alpha\, x_\beta\, x_\gamma\, x_\lambda\, \psi'' \right]_{x\left(^1_{kk'}\right)} \right\}$$

où les x_i sont les coordonnées des atomes, $\psi\,(r^2) = V(r)$, et les $x\left(^1_{kk'}\right)$ sont les positions des atomes voisins d'un atome origine fixé.

Ces relations appliquées à notre cubique centré aboutissent aux trois équations :

$$\left|\begin{array}{l} 2a\, C_{11} = \frac{2}{3}\left\{ V''(r_1) + \frac{2}{r_1} V'(r_1) \right\} + 2\, V''(r_2) \\ 2a\, C_{12} = \frac{2}{3}\left\{ V''(r_1) - \frac{4}{r_1} V'(r_1) \right\} - \frac{2}{r_2} V'(r_2) \\ 2a\, C_{44} = \frac{2}{3}\left\{ V''(r_1) + \frac{2}{r_1} V'(r_1) \right\} + \frac{2}{r_2} V'(r_2) \end{array}\right.$$

où r_1 et r_2 sont, pour le cristal parfait, les distances des premiers et deuxièmes voisins.

Ces trois relations ne font intervenir que les dérivées du potentiel et déterminent donc les trois constantes A, B, C.

La quatrième constante D découle alors de l'énergie de formation de la lacune d'après KENNY / 36 / par :

$$E_V^f + E_V^r = -\,4\, V(r_1) - 3\, V(r_2)$$

où KENNY admet (et vérifie par son calcul de relaxation) que $E_V^r \cong 0{,}3\, E_V^f$ (E_V^f est l'énergie de formation de la lacune et E_V^r l'énergie gagnée par relaxation des atomes autour de la lacune).

A.IX.2 - En région 2 $(r_j < r < r_E)$

Les quatre constantes de la région 2, A_2, B_2, C_2 et D_2 sont déterminées par les quatre relations de continuité :

$$\left|\begin{array}{l} V_2\,(r_E) = 0 \\ V_2'\,(r_E) = 0 \\ V_2\,(r_j) = V_1\,(r_j) \\ V_2'\,(r_j) = V_1'\,(r_j) \end{array}\right.$$

et r_j et r_E ont été ajustés par KENNY pour :

$$V_2''(r_j) = V_1''(r_j)$$

A.IX.3 - EN RÉGION 3 (faibles distances : $r < r_c$)

Les conditions sont différentes pour les cinq potentiels :

. KENNY utilise un potentiel polynomial de degré 4 ajusté (ainsi que sa dérivée) au potentiel de type Born-Mayer d'ABRAHAMSON / 55 / :

$$U_{A\ eV}(r) = 23990 \exp(-3{,}53244\ r\ (\text{Å}))$$

On a alors les conditions :

$$\left|\begin{array}{l} V_3(r_c) = V_1(r_c) \\ V_3'(r_c) = V_1'(r_c) \\ V_3''(r_c) = V_1''(r_c) \\ V_3(r_1) = U_A(r_1) \\ V_3'(r_1) = U_A'(r_1) \end{array}\right.$$

avec $r_1 = 1{,}2$ Å.

. F. MAURY utilise un polynôme de degré 3 comme dans les zones (1) et (2), coïncidant en 2 points r_1 et r_2 avec le potentiel de Born-Mayer qu'elle-même a déterminé :

$$U_{eV}(r) = 5670 \exp(-3{,}36\ r\ (\text{Å})) \qquad / 31 /$$

Les quatre équations nécessaires s'écrivent :

$$\left|\begin{array}{l} V_3(r_c) = V_1(r_c) \\ V_3'(r_c) = V_1'(r_c) \\ V_3(r_1) = U(r_1) \\ V_3(r_2) = U(r_2) \end{array}\right.$$

avec $\left|\begin{array}{l} r_1 = 1{,}30\ a \\ U(r_1) = 5{,}86\ eV \end{array}\right.$ et $\left|\begin{array}{l} r_2 = 1{,}35\ a \\ U(r_2) = 4{,}50\ eV \end{array}\right.$

. Pour les potentiels II et III nous avons utilisé la même méthode que F. MAURY avec différentes valeurs de r_c, r_1 et r_2.

. Le potentiel IV est déterminé par :

$$V_3(r_c) = V_1(r_c)$$
$$V_3'(r_c) = V_1'(r_c)$$
$$V_3''(r_c) = V_1''(r_c)$$
$$V_3(r_1) = U(r_1)$$

où $r_1 = 1{,}20\ a$ $U(r_1) = 10{,}0$ eV est un point du potentiel Born-Mayer de F. MAURY.

Pour ne pas modifier le programme d'ordinateur qui calcule systématiquement le potentiel à partir de r_1 et r_2, j'ai en fait utilisé un second point M_2 artificiel :

($r_2 = 1{,}34\ a$ et $V_3(r_2) = 3{,}32$ eV).

A.IX.4 - RÉSULTATS

Les potentiels sont définis dans les tableaux suivants :

- Potentiel KENNY : $V(r) = A(r/a)^4 + B(r/a)^3 + C(r/a)^2 + D(r/a) + E$

	E	A	B	C	D
Région 1 $1{,}15\ a \leqslant r \leqslant 2{,}1\ a$	0	-0,4307	6,9211	-21,9644	19,105
Région 2 $2{,}1\ a \leqslant r \leqslant 2{,}443\ a$	0	-12,1747	80,9145	-177,3644	127,8942
Région 3 $r \leqslant 1{,}15\ a$	2336,75	-9804,28	17635,9	-15865,9	5748,80

- Potentiel I : $V(r) = A\,(r/a)^3 + B\,(r/a)^2 + C\,(r/a) + D$

	A	B	C	D
Région 1 $1{,}732\ a \leqslant r \leqslant 2{,}1\ a$	- 0,3209	5,1558	-16,3625	14,2332
Région 2 $2{,}1\ a \leqslant r \leqslant 2{,}443\ a$	- 9,0702	60,2813	-132,1365	95,2823
Région 3 $r \leqslant 1{,}732\ a$	-10,4837	79,7723	-183,373	132,463

- Potentiel II :

	A	B	C	D
Région 1 $1{,}725\ a \leqslant r \leqslant 2{,}1\ a$	- 0,427209	6,86699	- 21,7962	19,0357
Région 2 $2{,}1\ a \leqslant r \leqslant 2{,}403\ a$	-14,2469	93,9312	-204,632	147,021
Région 3 $r \leqslant 1{,}725\ a$	-10,7573	80,8077	-184,676	133,008

- Potentiels III et IV : ces potentiels sont identiques au potentiel II dans les régions (1) et (2) et ne diffèrent que par les coefficients en région (3) et la valeur de la frontière r_c entre cette région et la région 1.

	A	B	C	C
Potentiel III $r \leqslant 1{,}15\ a$	-69,4181	846,912	-1680,18	920,142
Potentiel IV $r \leqslant 1{,}60\ a$	-124,940	604,532	- 978,066	529,050

ANNEXE X

RESULTATS DU CALCUL DE "LATTICE STATICS"

A.X .1 - PAIRE DE FRENKEL (400) CAS B (OU INTERSTITIEL SEUL)

. Potentiel I

. σ = 30 hbar

. Cristal (16, 12, 12)

Conditions	Parfait	Déformé	$\sigma = 0$ + défaut	$\sigma_{//}$	$\sigma_{\perp}$
E_T (eV)	-2170,1160	-2170,9089	-2149,587	-2150,4536	-2150,4444
E_T (eV) lacune hors du cristal	"	"	-	-2155,3340	-2155,3251

A.X .2 - INTERSTITIEL SEUL

Conditions générales :

. Cristal (12, 12, 12)

. Calcul de l'énergie totale E_T en eV

. La contrainte σ est exprimée en hbar

Conditions	Parfait	Parfait déformé	$\sigma = 0$ + défaut	$\sigma_{//}$	$\sigma_{60°}$	$\sigma_{\perp}$
Potentiel I	-1684,481	-1685,0957	-1668,807	-1669,4981	-1669,4949	-1669,4873
Potentiel II $\sigma = 30$	-1898,1605	-1898,9806	-1882,3237	-1883,2019	-1883,1822	-1883,1556
$\sigma = 100$	"	-1900,8103	"	-1885,1458	-	-1884,9939
$\sigma = 200$	"	-1903,2199	"	-1887,6653	-	-1887,3729
Potentiel III $\sigma = 30$	"	-1898,9806	-1892,9125	-1893,7309	-	-1893,7435
$\sigma = 200$	"	-1903,2199	"	-1898,22	-1897,9861	-1898,0442
Potentiel IV $\sigma = 30$	"	-1898,9806	-1891,0070	-1891,8436	-1891,8373	-1891,8217
$\sigma = 100$	"	-1900,8103	"	-1893,7115	-1893,6907	-1893,6386

BIBLIOGRAPHIE

/ 1 / G. DELSARTE
Thèse Orsay (1977) - Rapport CEA-R-4955 (1978).

/ 2 / S. BOUFFARD, L. ZUPPIROLI
Solid State Commun., 28, 113 (1978).

/ 3 / R.R. CONTE, J. VON STEBUT
Rev. Phys. Appl., 4, 70 (1969).

/ 4 / L.W. Mac KEEHAN
Phys. Rev., 36, 948 (1930).

/ 5 / R.M. BOZORTH
Phys. Rev., 70, 923 (1946).

/ 6 / J. PONSOYE
Rad. Eff., 8 13 (1971).

/ 7 / D. LESUEUR, J.Y. THOMAS, V. VENDITTI
Rev. Phys. Appl., 6, 91 (1971).

/ 8 / P. BOIS, B. BEUNEU
Physics Letters, 83 A, 279 (1981).

/ 9 / G. DELSARTE
Le Journal de Physique, 36, 1261 (1975).

/ 10 / D. LESUEUR
Non publié.

/ 11 / J. VON STEBUT
Thèse Orsay (1973) - Rapport CEA-R-4558 (1973).

/ 12 / J. VON STEBUT
Phys. Stat. Sol. (a), 9, K 145 (1972).

/ 13 / J. VON STEBUT, A. COCHARD
Proceedings Int. Conf. Gatlinburg (USA) "Fundamental aspects of radiation damage in metals", tome 1, p. 247 (1975).

/ 14 / R.R. CONTE, J. DURAL
Rev. Phys. Appl., 2, 1 (1967).

/ 15 / H. WENZL
Vacancies and interstitials in metals (North Holland, Amsterdam). p. 739 (1969).

/ 16 / D.K. HOLMES
dans "The interaction of radiation with solids", Proceedings of the International Summer School on Solid State Physics, Mol, Belgium p. 172 (1963).

/ 17 / O.S. OEN
Rapport ORNL-4897 (1973).

/ 18 / P. VAJDA
Rev. Mod. Phys., vol. 49, n° 3, p. 49 (1977).

/ 19 / G.H. KINCHIN, R.S. PEASE
Rept. Progr. Phys., 18, 1 (1958).

/ 20 / L. ZUPPIROLI
"Défauts ponctuels dans les solides", Ecole d'Eté de Confolant (Editions de Physique, Orsay), p. 155 (1977).

/ 21 / W. SCHILLING
Vacancies and interstitials in metals (North Holland, Amsterdam), p. 320 (1969).

/ 22 / P. EHRHART, U. SCHLAGHECK
"Fundamental aspects of radiation damage in metals", Proceedings of an International Conference, Gatlinburg, Tennesseee, USA (1975). USERDA Conf. - 751006 - P1, vol. 2, p. 839.

/ 23 / C. MINIER, M. MINIER, R. ANDREANI
Phys. Rev. B, 22, 28 (1980).

/ 24 / S. MANTL, W. TRIFTHAÜSER
Même conférence que / 13 / et / 22 /, vol. 2, p. 1122.

/ 25 / G.H. VINEYARD
J. Phys. Soc. Japan, 18 (suppl. III), 144 (1963).

/ 26 / J.R. BEELER
Phys. Rev., vol. 150, n° 2, 470 (1966).

/ 27 / D.N. SEIDMAN
"Radiation Damage in Metals", édité par N.L. Peterson et S.D. Harkness (Metals Park, Ohio : American Society for Metals), pp. 28-57.

/ 28 / CHING-YEU WEI, D.N. SEIDMAN
Phil. Mag. (Sept. 1980).

/ 29 / VON GUERARD
Même conférence que / 13 / et / 22 /, vol. I, p. 287.

/ 30 / M. BIGET, P. VAJDA, A. LUCASSON, P. LUCASSON
Radiation Effects, 21, 229 (1974).

/ 31 / F. MAURY, P. VAJDA, M. BIGET, A. LUCASSON, P. LUCASSON
Radiation Effects, 25, 175 (1975).

/ 32 / R. RIZK, P. VAJDA, A. LUCASSON, P. LUCASSON
Phys. Stat. Sol. (a), 18, 241 (1973).

/ 33 / P. EHRHART
Même conférence que / 22 /, vol. 1, p. 302.

/ 34 / S. OKUDA
Même conférence que / 22 /, vol. 1, p. 361.

/ 35 / F. MAURY, P. LUCASSON
Phys. Stat. Sol. (a), 34, 513 (1976).

/ 36 / P.N. KENNY, P.T. HEALD
Phil. Mag., 29, 1137 (1974).

/ 37 / H.B. AFMAN
Phys. Stat. Sol. (a), 11, 705 (1972).

/ 38 / H. KUGLER
Thèse soutenue à l'Université de Stuttgart (Juin 1980).

H. KUGLER, I.A. SCHWIRTLICH, S. TAKAKI, U. ZIEBERT, H. SCHULTZ
Même conférence que / 50 /, p. 191 (1982).

/ 39 / R. PICHON, P. BICHON, P. MOSER
Journal de Physique, Colloque C2, suppl. au n° 7, 32, C2-39 (1971).

/ 40 / G. ANTESBERGER, K. SONNENBERG
Radiation Effects, 38, 239 (1978).

/ 41 / G.L. KULCINSKI
Même conférence que / 15 /, p. 275 (1969).

/ 42 / J.L. POUCHOU, L. ZUPPIROLI, J. ARDONCEAU, J. LETEURTRE
Radiation Effects, 29, 225 (1976).

/ 43 / S. BOUFFARD
Thèse d'Ingénieur - Docteur Orsay (1979) - Rapport CEA-R-5015.

/ 44 / R.R. CONTE
"Eléments de cryogénie", Masson Editeurs (Paris) (1970).

/ 45 / K. SCHROEDER
Thesis, Jül-604-FN, KFA Jülich, Germany (1969).

/ 46 / G.C. KUCZINSKI
Phys. Rev., 94, 61 (1954).

/ 47 / A.S. NOWICK, B.S. BERRY
"Anelastic relaxation in crystalline solids", Academic Press.

/ 48 / H. JACQUES
Communication personnelle.

/ 49 / S. OKUDA, H. MIZUBAYASHI
Crystal Lattice Defects, 4, 75 (1973).

/ 50 / H. JACQUES, K.H. ROBROCK
"Point defects and defect interactions in metals", Compte-rendu de la conférence de Yamada V, University of Tokyo Press, p. 159 (1982).

/ 51 / H. MIZUBAYASHI, S. OKUDA
Radiation Effects, 33, 221 (1977).

/ 52 / P. EHRHART
J. Nucl. Mat. 69 & 70, 200 (1978).

/ 53 / B.S. BERRY, J.L. OREHOTSKY
Phil. Mag., 9, 467 (1964).

/ 54 / R.A. JOHNSON, W.D. WILSON
"Interatomic Potentials and Simulation of Lattice Defects", édité par Gehlen, Beeler and Jaffee (New York : Plenum), p. 301.

/ 55 / A.A. ABRAHAMSON
Phys. Rev., 178 (1), 76 (1969).

/ 56 / J. NIHOUL
Même conférence que / 15 /, p. 839 (1969).

/ 57 / B. BEUNEU
Le Journal de Physique - Lettres, 40, L-457 (1979).

/ 58 / B. BEUNEU, Y. QUERE
C.R. Acad. Sc. Paris, t. 293, série II-15, 5 (1981) (publié conjointement dans Le Journal de Physique - Lettres, 42, L-465 (1981)).

/ 59 / B. BEUNEU, Y. QUERE
Même conférence que / 50 /, p. 156 (1982).

/ 60 / J. DURAL
Thèse Université Poitiers - Rapport CEA R-5091 (1981).

/ 61 / R.R. CONTE, J. DURAL, P. SONIGO
Rev. Phys. Appl., 3, 93 (1968).

/ 62 / J.G. RIDER, C.T.B. FOXON
Phil. Mag., 16, 1133 (1967).

/ 63 / H.B. HUNTINGTON
"Solid State Physics", vol. 7, Academic Press, New York, p. 213 (1958).

/ 64 / M. BORN, K. HUANG
"Dynamical Theory of Crystal Lattices"
Oxfort University Press. ch. III et V.

Manuscrit reçu le 24 février 1984

INFLUENCE OF AN UNIAXIAL STRESS ON POINT DEFECTS

Abstract : We study two effects of an elastic external uniaxial stress on point defects (created by electron irradiation) :

1/ We measure the linear variation of their resistivity ρ_D under the elastic strain ε in Copper. It gives the specific elastoresistivity (E.R.S.) $\chi_D = \delta \rho_D / \varepsilon$ .With the help of the results of VON STEBUT (fast neutrons) we show that the E.R.S. is characteristic of a defect and of its configuration.

2/ By means of resistivity measurements in molybdenum, we observe a paraelastic phenomenon. It is thermally activated ($\nu_o \simeq 10^{12}\ s^{-1}$ and $E \simeq 72$ meV) and we attribute it to the reorientation of a dumbbell interstitial under the uniaxial stress.

The resistivity of this dumbbell is higher along its axis than perpendicularly to it. We have completed these results with some configuration energy calculations for the dumbbell and with a simple kinetic model.

Brigitte BEUNEU

INFLUENCE D'UNE CONTRAINTE UNIAXIALE SUR DES DEFAUTS PONCTUELS

Résumé : Nous étudions deux effets d'une contrainte extérieure uniaxiale et élastique sur les défauts ponctuels créés par irradiation aux électrons:

1/ Nous mesurons la variation linéaire de leur résistivité ρ_D sous l'effet de la déformation élastique ε, ou élastorésistivité spécifique (E.R.S.) $\chi_D = \delta \rho_D/\varepsilon$. Dans le cuivre et par comparaison avec les résultats de VON STEBUT aux neutrons rapides, nous montrons que l'E.R.S. est caractéristique d'un défaut et de sa configuration.

2/ Nous observons dans le molybdène par mesure de résistivité un phénomène paraélastique thermiquement activé ($\nu_o \simeq 10^{12}$ s^{-1} et $E \simeq 72$ meV) que nous attribuons à la réorientation sous contrainte de l'interstitiel dissocié en haltère. Sa résistivité est alors plus élevée parallèlement à son axe que perpendiculairement. Des calculs d'énergies de configuration d'haltères et un modèle cinétique simple complètent ces résultats expérimentaux.

Mots clés : Défauts ponctuels, irradiations, contrainte uniaxiale, molybdène, cuivre, résistivité, réorientation, configuration (énergie de).